

KfK 3775
Juli 1984
(1. Ex.)

Der Brüterbrennstoffkreislauf Brennelemente und ihre Wiederaufarbeitung

**Sammlung der Beiträge zur
KfK/KTG-Fachtagung am
3. und 4. November 1983
im Kernforschungszentrum Karlsruhe**

Kernforschungszentrum Karlsruhe

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
Zentralbibliothek

K E R N F O R S C H U N G S Z E N T R U M K A R L S R U H E

KfK 3775

DER BRÜTERBRENNSTOFFKREISLAUF

BRENNELEMENTE UND IHRE WIEDERAUFARBEITUNG

Sammlung der Beiträge zur KfK/KTG-Fachtagung
am 3. und 4. November 1983 im Kernforschungs-
zentrum Karlsruhe



Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
Zentralbibliothek

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

Als Manuskript vervielfältigt
Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
ISSN 0303-4003

Der vorliegende KfK-Bericht gibt die Vorträge wieder, die anlässlich einer gemeinsamen Tagung der KTG-Fachgruppen "Brennelemente" und "Chemie und Entsorgung" und des Kernforschungszentrums Karlsruhe zum Thema "Der Brüterbrennstoffkreislauf - Brennelemente und ihre Wiederaufarbeitung" gehalten wurden.

Dabei hat es sich als vorteilhaft erwiesen, daß an der Veranstaltung zwei KTG-Fachgruppen teilnahmen, da hierdurch unterschiedliche Problemkreise eine breitere Diskussionsbasis ermöglichten und gegenseitige Anregungen mit sich brachten.

Das Kernforschungszentrum Karlsruhe leistete Fachbeiträge durch das Projekt Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung und durch das Projekt Schneller Brüter.

Abstract

This publication presents the contributions submitted at the seminar "The Fast Breeder Fuel Cycle - Fuel Elements and their Reprocessing", held on 3^d and 4th of november, 1983 at the Karlsruhe Nuclear Research Centre.

A summary lecture reports on the different types of fast breeder fuel elements, and on their storage and transport. Other subjects are fast breeder fuel fabrication and cutting of fuel elements.

In several contributions concerning the reprocessing of fast breeder fuel, there are treated the differences between light water reactor (LWR) and fast breeder (FBR) fuel reprocessing, contributing valuable data especially the experience with reprocessing of KNK II fuel in the MILLI lab scale reprocessing facility.

A further main subject relates to future R & D works, including the conception of a FBR fuel reprocessing pilot plant and the employment of electrolytic processes for simplification of reprocessing techniques and reduction of waste, already successfully demonstrated in LWR fuel reprocessing.

I N H A L T S V E R Z E I C H N I S

U. Wehmann, K.H. Wenk, P. Dünner

Schnellbrüter - Brennelemente 1

J. Krellmann

Brüterbrennstoffe: Herstellung und Erfahrung 21

G.W. Köhler, H. Lahr

Lagerung und Transport von Brüterbrennelementen 49

G. Bestenreiner

Brennelementstruktur und -zerlegung 79

H. Kleykamp

Zur derzeitigen Kenntnis über die Zusammensetzung und
den chemischen Zustand von Rückständen bestrahlter
SBR-Brennstoffe nach Auflösung in Salpetersäure 101

H.W. Wiese

Vergleich berechneter und routinemässig gemessener
Inventare bestrahlter KNK II/1-BE sowie Bestimmung
verglasungsrelevanter Spaltprodukte 109

H.-J. Bleyl

Erfahrungen mit der Aufarbeitung von KNK-Brennstoff
in der MILLI 123

L. Stieglitz, R. Becker

Chemische und radiolytische Solventzersetzung
im PUREX-Prozeß 133

G. Koch

MILLI II, Konzept einer Pilotanlage zur Wieder-
aufarbeitung von Schnellbrüter-Brennelementen 147

G. Böhme, H. Frotscher

Fernbediente Instandhaltungstechniken für die
Pilotanlage MILLI II 171

H. Schmieder

Möglichkeiten zur Abfallminimierung und zu
Vereinfachungen im Wiederaufarbeitungsprozeß 181

H. Lahr, W. Köhler

Das mechanische Headend der Brüterbrennelement-
Wiederaufarbeitung 201

SCHNELLBRÜTER - BRENNELEMENTE

U. Wehmann, K.H. Wenk, P. Dünner

Interatom, Bensberg

1. Einleitung

In dem einleitenden Vortrag zu diesem Seminar soll zunächst einmal ein Überblick gegeben werden über die derzeit im Betrieb bzw. in der Fertigung befindlichen BE-Typen; es wird dann auf die Anforderungen an die BE-Auslegung eingegangen, anschließend werden die daraus abzuleitenden Belastungen der verschiedenen BE-Komponenten diskutiert und zum Schluß die Auslegungsdaten und mögliche weitere Entwicklungen beschrieben.

2. Beschreibung der verschiedenen Schnellbrüter-Brennelementtypen

Bei der Beschreibung der BE-Typen liegt (vor allem hier in Karlsruhe) nichts näher als mit den KNK-Brennelementen zu beginnen, die sich ja im bisherigen Betrieb sehr bewährt haben, wie auch das jetzt im zweiten Kern weiterbestrahlte BE des Erstkerns zeigt, das im lokalen Abbrand die 100.000 MWd/tSM bereits deutlich überschritten hat.

In Abb. 1 sind die für uns zur Zeit wichtigsten BE-Typen dargestellt, wobei jeweils einige charakteristische Daten neben dem Element bzw. in der Tabelle im unteren Teil angegeben sind. Wir sehen z. B. im Fall der KNK-II Elemente, daß die 2.2 m langen BE des Zweitkerns 127 Brennstäbe mit 1.5 m Länge und 7.6 mm Außendurchmesser enthalten. Beim Übergang vom Testreaktor KNK-II zum Prototypreaktor SNR-300 nehmen die axialen Dimensionen deutlich zu, während die radialen Dimensionen in etwa gleichbleiben. Die Spaltstoff- und Brutstofflänge wächst mit 95 cm bzw. 2 x 40 cm auf brütertypische Werte, so daß die Brennstablänge um fast 1 m wächst, und da auch die "Extremitäten", Kopf und Fuß, größer werden, ist das BE insgesamt 1.5 m länger.

Diese Länge blieb auch bei dem vor knapp 10 Jahren konzipierten BE des sog. SNR-2 HOM1-Kerns bestehen, während die radialen Dimensionen aufgrund der größeren Stabzahl und des größeren Stabdurchmessers deutlich wachsen.

Inzwischen hat auch uns die deutsch-französische Freundschaft eingeholt, und der SPX-1, der mit seinen Elementen im nächsten Jahr in Betrieb gehen soll, ist zu einem gewissen Maßstab für uns geworden. Die Verlängerung von Kopf und Fuß, die hier deutlich sichtbar wird, wird auf französischer Seite bei den Überlegungen zum SPX-2 jedoch teilweise rückgängig gemacht, so daß das SPX-2-Element dem hier dargestellten Element der heutigen SNR-2 Konzeption recht ähnlich ist. Dieses typische Schnellbrüter-BE zukünftiger Leistungsreaktoren zeichnet sich aus durch:

- eine Gesamtlänge von knapp 5 m
- ein Brennstabbündel von 271 Stäben mit 8.5 mm Durchmesser und 2.7 m Länge
- einen relativ kurzen Fuß
- die Abstandshalterung zwischen den BE erfolgt durch die in 2 Ebenen angeordneten Pflaster, die gegenüber früheren SNR-Auslegungen deutlich vereinfacht sind.

3. Anforderungen an die BE-Auslegung und ihre Konsequenzen

3.1 Formulierung der Anforderungen

Nach der allgemeinen Beschreibung der Brennelementtypen wird auf die Anforderungen an die Auslegung der Brennelemente und ihrer Komponenten eingegangen, wie sie in Abb. 2 zusammengestellt sind.

3.2 Forderung Geringer Brennstoffzykluskosten

Aus der Vielzahl der Anforderungen wird auf einige wenige etwas näher eingegangen und dazu zunächst einmal die Brennstoffzykluskosten diskutiert, die in Abb. 3 als Funktion verschiedener

Auslegungsparameter dargestellt sind. Es gibt hier eine Kategorie untergeordneter Größen wie Spaltstoffhöhe, Längenleistung und Schmierdichte, während die Wichtigkeit zweier Parameter deutlich wird. Zum einen ist es der Brennstabdurchmesser, der im Bereich von 6 - 11 mm variiert wurde und der Abbrand, dessen Einfluß im Bereich von 100 - 200 MWd/kg SM dargestellt ist. Beim Stabdurchmesser ist zu bedenken, daß mit steigenden Werten auch die Elementgröße wächst, was dann bei konstant gehaltener Elementzahl zu einem größeren Tankdurchmesser führt und so eine gewisse Anlagenpönale nach sich zieht. Insofern dürfte mit dem jetzt in Anlehnung an den SPX-1 gewählten Durchmesser von 8.5 mm das hier vorhandene Kostensenkungspotential weitgehend ausgeschöpft sein.

Beim Abbrand zeigt die Kostentendenz im Bereich von 100 - 200 MWd/kg SM noch stetig nach unten, wobei jedoch auch hier einmal zu untersuchen wäre, wie sich mögliche Pönalen von der Wiederaufarbeitung her auswirken könnten. Vor allem aber ist das Verhalten des Strukturmaterials bei sehr hohen Abbränden aufgrund fehlender Bestrahlungserfahrungen noch sehr unsicher, so daß wir uns mit dem noch immer anspruchsvollen Zielwert von 140 MWd/kg SM begnügen sollten.

3.3 Konsequenzen der Abbranderhöhung für das Strukturmaterial

Die Konsequenzen eines solchen Abbrandzieles für das Strukturmaterial der Kernelemente soll anhand einiger Beispiele erläutert und dazu zunächst mit Hilfe von Abb. 4 gezeigt werden, wie dieses Abbrandziel in den allgemeinen Rahmen unserer SNR-Projekte hineinpaßt. Hier ist die lineare Schwellaufweitung dargestellt, die der austenitische Stahl 1.4970 als Funktion der Neutronendosis erfährt, und zwar zum einen im Zustand kva und zum anderen als kv-Material, das jetzt das Referenzmaterial für KNK, SNR-300 und SNR-2 ist. Man sieht, daß wir wirklich klein angefangen haben mit dem Erstkern von KNK-II, daß aber im dritten Kern schon Dosen erreicht werden, die mit denen des SNR-300 Erstkerns vergleichbar sind. SNR-300 und SNR-2 trennt jedoch noch in etwa ein Faktor 2,

und hier tritt dann die Notwendigkeit, niedrig schwellende Materialien einsetzen zu müssen, überdeutlich zu Tage. Es ist klar, daß mit dem 1.4970 kv,a für SNR-2 eine sinnvolle Elementauslegung nicht mehr möglich wäre, da die lineare Schwellaufweitung fast 10 % erreicht.

Als weiteres Beispiel zu dem Problem der Strukturmaterialbelastungen wird in Abb. 5 illustriert, welche geometrischen Verformungen die Elemente während des Leistungsbetriebs erfahren. Die Elemente sind schematisch dargestellt mit ihrer Mittelachse, dem Kasten und den beiden Kontaktebenen zwischen den Elementen sowie zwischen den äußeren Elementen und den Stützringen des Kernhalterungssystems. Man kann deutlich die beiden Verformungseffekte der BE erkennen:

1. Die Kastenaufweitungen, die bei Neutronenbestrahlung durch Schwellen und durch Innendruck bedingtes Kriechen erfolgen. Sie sind so groß im Kerninneren, wo die Dosis groß ist, und man sieht z. B., daß weniger stark abgebrannte Elemente deutlich weniger ausgeprägte Bäuche haben.
2. Die Elementverbiegungen, die durch Gradienten der Temperatur und der Dosis von einer Flanke der BE-Kästen zur anderen bedingt sind. Hinzu kommen dann noch Kriecheffekte aufgrund der Kraftübertragungen in den Stützebenen. Man sieht, daß diese Verbiegungen nur im äußeren Corebereich auftreten, da dort große Gradienten auftreten. Im Inneren stehen die Elemente dagegen nahezu gerade.

Aus diesem Bild werden die in Abb. 2 genannten Forderungen nach Handhabbarkeit der Elemente sehr deutlich, daß nämlich

- der Spalt zwischen den Kästen so ausgelegt werden muß, daß Kastenkontakt vermieden wird, und daß

- durch geeignete Auslegung der Kontaktebenen (Lage und Spalt zwischen den Pflastern, bzw. Spalt zwischen den äußeren Elementpflastern und den Stutzringen) zu starke Verbiegungen und Kräfte zwischen den Elementen vermieden werden.

3.4 Anforderungen an den Brennstoff

Nach diesem Überblick über einige wichtige Auslegungsanforderungen an die Brennelemente wird nun auf den Brennstoff als die wichtigste Komponente für die Wiederaufarbeitung eingegangen. Fertigungstechnische Aspekte, d. h., die Frage, wie ein in Salpetersäure gut lösbarer Brennstoff verfügbar gemacht werden kann, werden nicht diskutiert, da sich damit ein späterer Vortrag noch beschäftigen wird. Es wird vielmehr versucht aufzuzeigen, bei welchen Spezifikationsanforderungen an die Brennstofftablette das Kriterium der "Wiederaufarbeitbarkeit" eine Rolle spielt bzw. Berücksichtigung finden muß.

Die wichtigsten allgemeinen Anforderungen an den Brennstoff sind bereits in der Abb. 2 mit formuliert worden

- technisch machbar
- Sicherheitskriterien erfüllbar
- Wirtschaftlichkeit: hoher Abbrand realisierbar
- Löslichkeit

Daraus sind auch direkt die Kriterien für die Brennstoffspezifikation ableitbar, die zur Formulierung verschiedener Produktmerkmale geführt haben, wie sie in Abb. 6 zusammengestellt sind. Dabei ist oftmals zwischen konkurrierenden Erfordernissen von Auslegung, Betrieb und Fertigung abzuwägen, wobei den sicherheitsrelevanten Gesichtspunkten die höchste Priorität zukommt. Spezifizierte Werte sind für den Erstkern SNR 300 sowie den SNR 300 Zweitkern und SNR 2 angegeben.

- Der Pu-Gehalt muß wegen der Kriterien "Vermeidung zentralen Schmelzens" und "Löslichkeit" gleichermaßen begrenzt werden, da der Schmelzpunkt des Mischoxids mit dem Pu-Gehalt abnimmt und die Löslichkeit auch des Mischkristalls bei hohen Pu-Gehalten (≥ 40 %) beeinträchtigt wird.

- Bei der Festlegung der Stöchiometrie gibt es unterschiedliche und teilweise konkurrierende Anforderungen:
 - . Das Kriterium der Vermeidung von chemischer Wechselwirkung Brennstoff/Hülle fordert eine geringe Stöchiometrie, damit zur Vermeidung der Stahloxydation das Sauerstoffpotential gering gehalten wird.

 - . Das Kriterium der Vermeidung von zentralem Schmelzen fordert eine hohe Stöchiometrie, da so die Wärmeleitfähigkeit und der Schmelzpunkt günstig beeinflußt werden.

 - . Für gute Löslichkeit ist ein Wert bei $O/M = 1,97$ günstig, da dann radiale U/Pu-Umverteilungsvorgänge minimal sind und z.B. lokale Pu-Anreicherungszone am Zentralkanal mit eingeschränkter Löslichkeit vermieden werden.

Der spezifizierte O/M-Bereich ist somit ein Kompromiß hinsichtlich der verschiedenen Forderungen.

- Von der Mikrostruktur fordern alle genannten Kriterien eine möglichst homogene Verteilung. Hier spielen natürlich fertigungstechnische Details eine übergeordnete Rolle, z. B. der Einfluß von Sintertemperatur und Korngröße auf den Mischkristallanteil und die Sinterbindung der Keramik.

- Bei der Tablettendichte fordern der hohe Zielabbrand und die Vermeidung der mechanischen Wechselwirkung Brennstoff-Hülle die Bereitstellung eines gewissen Freivolumens über Tablettenporosität und Spalt. Da die Spaltweite zur Vermeidung eines zu großen Temperatursprungs zwischen Hüllrohr und Pellet begrenzt ist, sind Pelletdichten von etwa 95 % anzustreben.

Die Forderung nach geringer chemischer Wechselwirkung von Brennstoff und Hüllrohr führt ebenfalls zu einer hohen Pelletdichte, da der Brennstoff mit steigender Dichte chemisch inaktiver ist, eine geringere O/M-Drift und eine geringere Mobilität von Spaltprodukten und Sauerstoff zeigt.

Der Zusammenhang zwischen Tablettendichte und Löslichkeit ist mehr indirekt zu sehen. Die Brennstoffherstellverfahren, die zu hochlöslichem Brennstoff mit hohem Mischkristallanteil führen, (OCOM, AUPuC) weisen nämlich eine verfahrenstypische hohe Dichte von 92 - 95 % TD aus. Dies führte zum Begriff des "hochdichten hochlöslichen" Brennstoffs für SNR-300 und KNK-II Nachladungen.

Abschließend zu dieser Zusammenstellung sei vermerkt, daß die Pu-Löslichkeit als Spezifikationsanforderung in die Brennstoffspezifikation für SNR-300- und KNK-II-Nachladungen aufgenommen wurde. Die Pu-Löslichkeit wird spezifiziert mit 99 % nach 6-stündiger Lösezeit in 7-molarer HNO_3 .

4. Auslegungsdaten der Brennelemente und des Kerns

Nachdem hiermit bereits die wichtigsten Daten für den Brennstoff von Schnellbrüterbrennelementen genannt worden sind, soll noch kurz darauf eingegangen werden, wie auf Basis des heute vorgesehenen SNR-2-Konzepts die Elemente und der Kern aussehen, in denen der eben diskutierte Brennstoff eingesetzt werden soll.

Dazu zeigt zunächst einmal Abb. 7 einen Kernquerschnitt. Ihm soll nur entnommen werden, daß es sich um einen Kern mit 2 Anreicherungs-zonen handelt mit 252 Elementen in der inneren Spaltstoffzone und 162 in der äußeren, sowie 120 Brutelemente und 37 Absorbern.

In Abb. 8 sind die wichtigsten geometrischen Daten und nominalen Auslegungsbelastungen der SNR-2-Brennelemente zusammengestellt. Abb. 9 schließlich gibt einige auch für die Wiederaufarbeitung wichtigen Informationen über den Kern und seinen Brennstoff.

Wichtige Zahlen sind:

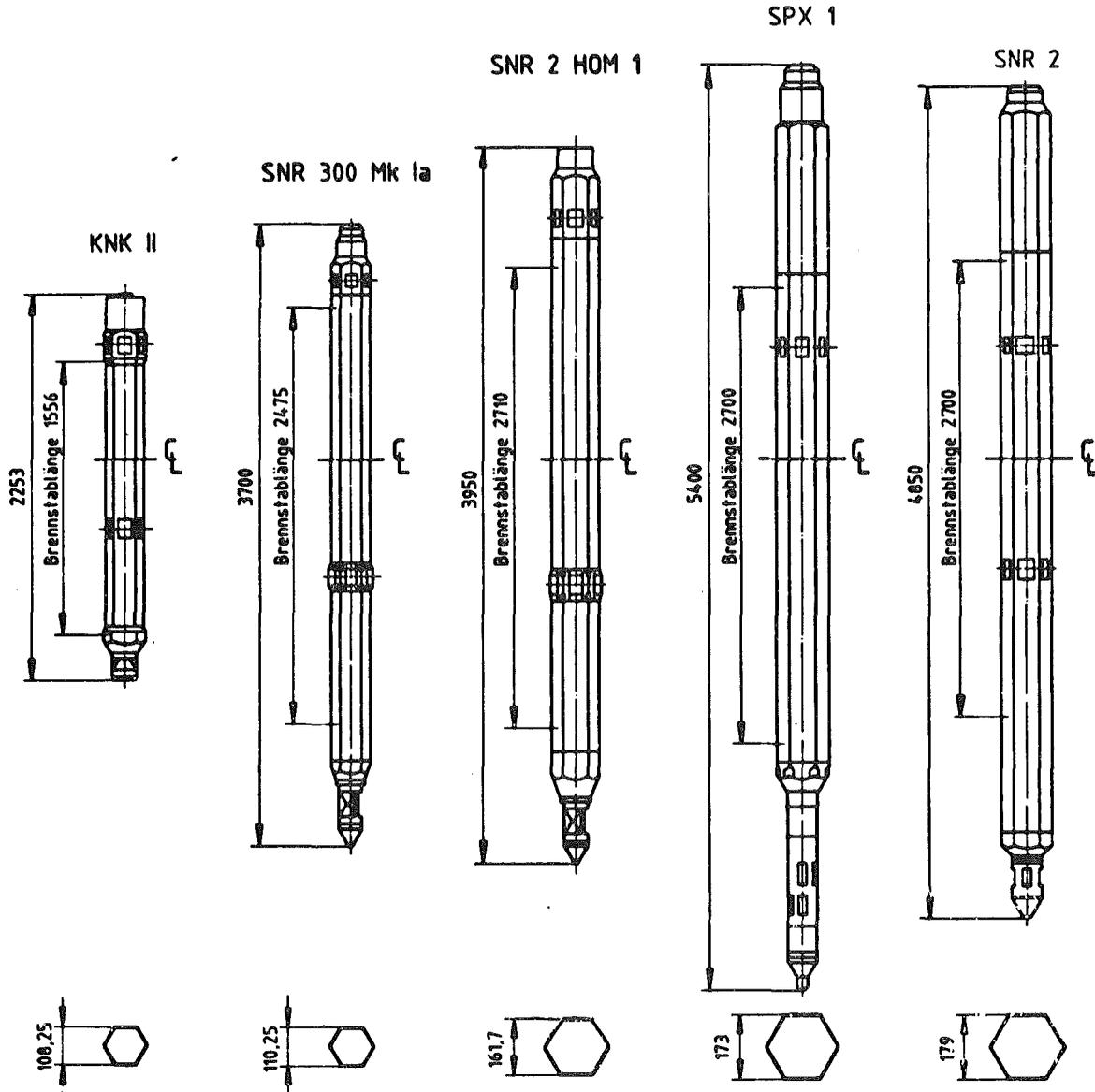
- Plutonium-Inventar im Kern 8.0 t zu BOL und 7.5 t zu EOL.
- In den Brutmänteln werden 1.7 t Pu erbrütet.
- Die Pu-Anreicherungen nehmen zu mit dem Abbrand, obwohl die Inventare abnehmen, was an dem insgesamt sinkenden Schwermetallgehalt liegt.
- Interessant ist vielleicht noch der Pu-Vektor, der im frischen Zustand einer LWR-Zusammensetzung entspricht und sich während der 4-jährigen Einsatzzeit relativ wenig ändert.
- Das Schwermetallinventar der Brennelemente addiert sich zu 61.6 t auf, woraus sich bei der Standzeit von 4 Jahren und einer Excorezeit von etwa 3 Jahren ein Schwermetallstrom von knapp 10 t pro Jahr ergibt, zu denen dann noch einige wenige t von den Brutelementen hinzukommen.

5. Mögliche Änderungen der BE-Auslegung

Zum Schluß sollen noch kurz mögliche Unterschiede zukünftiger Schnellbrüterelemente gegenüber dem hier vorgestellten Konzept diskutiert werden:

- Mögliche Vereinfachungen zur Kostensenkung oder Änderungen mit dem Ziel der besseren Zerlegbarkeit dürften wohl aus Sicht der WA nur wünschenswert sein, so z. B. die Verringerung des Stahlgewichts pro BE.
- Weitere Abbranderhöhungen über den heutigen Zielwert von 140 MWD/kg SM hinaus sind nur denkbar, wenn die Bestrahlungsversuche und Reaktorbetriebserfahrungen dieses zulassen. Hier wird dann zu prüfen sein, ob die erhoffte Senkung der Brennstoffzykluskosten nicht durch Pönalen bei der WA kompensiert wird.
- Heterogene Kerne könnten wieder interessant werden, wenn der günstigere Natrium-Voideffekt, das günstigere Abbrandverhalten oder das geringere Neutronenflußniveau wieder zu Ehren kommen. Die wesentliche Konsequenz wäre eine Anhebung der Pu-Anreicherung, so daß hier die Frage nach einem Limit mit Hinblick auf die Löslichkeit zu stellen wäre.
Andere Stabdurchmesser würden hauptsächlich die Inventare und das Anreicherungs-niveau ändern, dürften aber kaum schwerwiegende Konsequenzen für die WAA nach sich ziehen.
- Ganz anders sieht es bei den alternativen Brennstoffen aus, von denen wir wissen, daß sie die noch recht junge WA-Landschaft grundlegend verändern würden. Allerdings ist wohl in den nächsten Jahrzehnten keine Notwendigkeit gegeben, zu diesen alternativen Brennstoffen überzugehen. Es sieht vielmehr so aus, als könne der Mischoxidbrennstoff die stark herabgesetzten Anforderungen an die Schnellbrutreaktoren in der absehbaren Zukunft vollauf erfüllen.

INTERATOM



	KNK II/2	SNR 300Mk Ia	SNR 2 HOM 1	SPX 1	SNR 2
Stabanzahl	127	166	271	271	271
Stabdurchmesser [mm]	7,6	6,0	7,6	0,5	0,5
Brennstofflänge [mm]	600	950	950	1000	1000
Brutstofflänge [mm]	2 x 200	2 x 400	2 x 500	2 x 300	2 x 300

VERGLEICH VON SCHNELLBRÜTER - BRENNELEMENTEN

INTERATOM

- TECHNISCHE MACHBARKEIT

- SICHERHEIT
 - . KEIN BRENNSTOFFSCHMELZEN
 - . BRENNSTABINTEGRITÄT
(INNENDRUCKBELASTUNG,
CHEMISCHE WECHSELWIRKUNG BRENNSTOFF / HÜLLE,
MECHANISCHE WECHSELWIRKUNG BRENNSTOFF / HÜLLE)

- WIRTSCHAFTLICHKEIT
 - . GERINGE BRENNSTOFFZYKLUSKOSTEN
 - . GERINGE ANLAGEN- UND INVESTITIONSKOSTEN
 - . BETRIEBSSICHERHEIT / VERFÜGBARKEIT
(HANDHABBARKEIT DER KERNELEMENTE,
BEGRENZUNG DER KRAFTÜBERTRAGUNG
UND VERBIEGUNG)

- WIEDERAUFARBEITBARKEIT
 - . ZERLEGBARKEIT DER ELEMENTE
 - . LÖSLICHKEIT DES BRENNSTOFFS

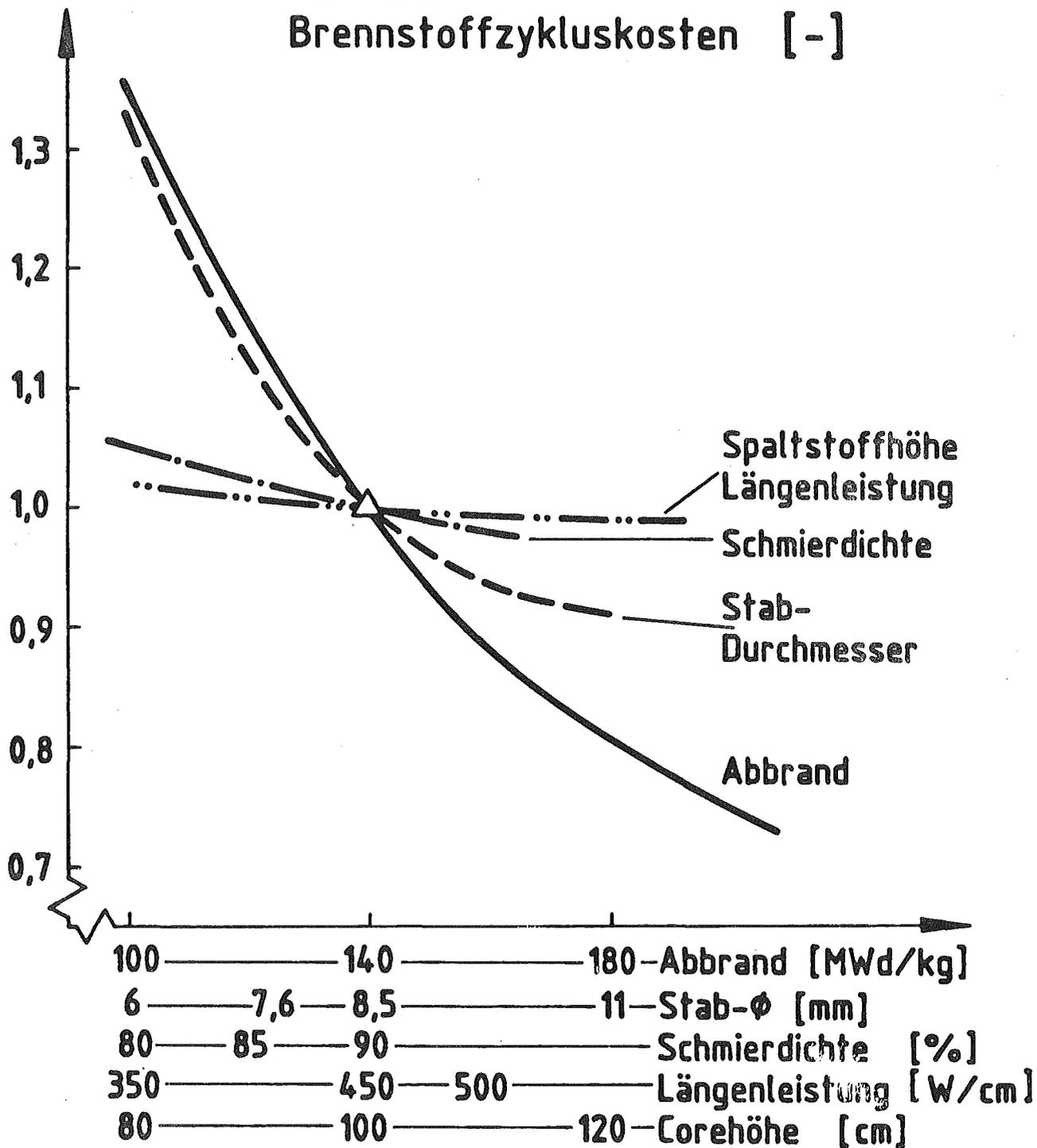
Reaktorkern

3/11/83

ALLGEMEINE ANFORDERUNGEN AN DIE BRENNELEMENTE UND
IHRE KOMPONENTEN

INTERATOM

Relative Brennstoffzykluskosten [-]



Reaktorkern

03/11/83

EINFLUß VON AUSLEGUNGSPARAMETERN AUF DIE
BRENNSTOFFZYKLUSKOSTEN

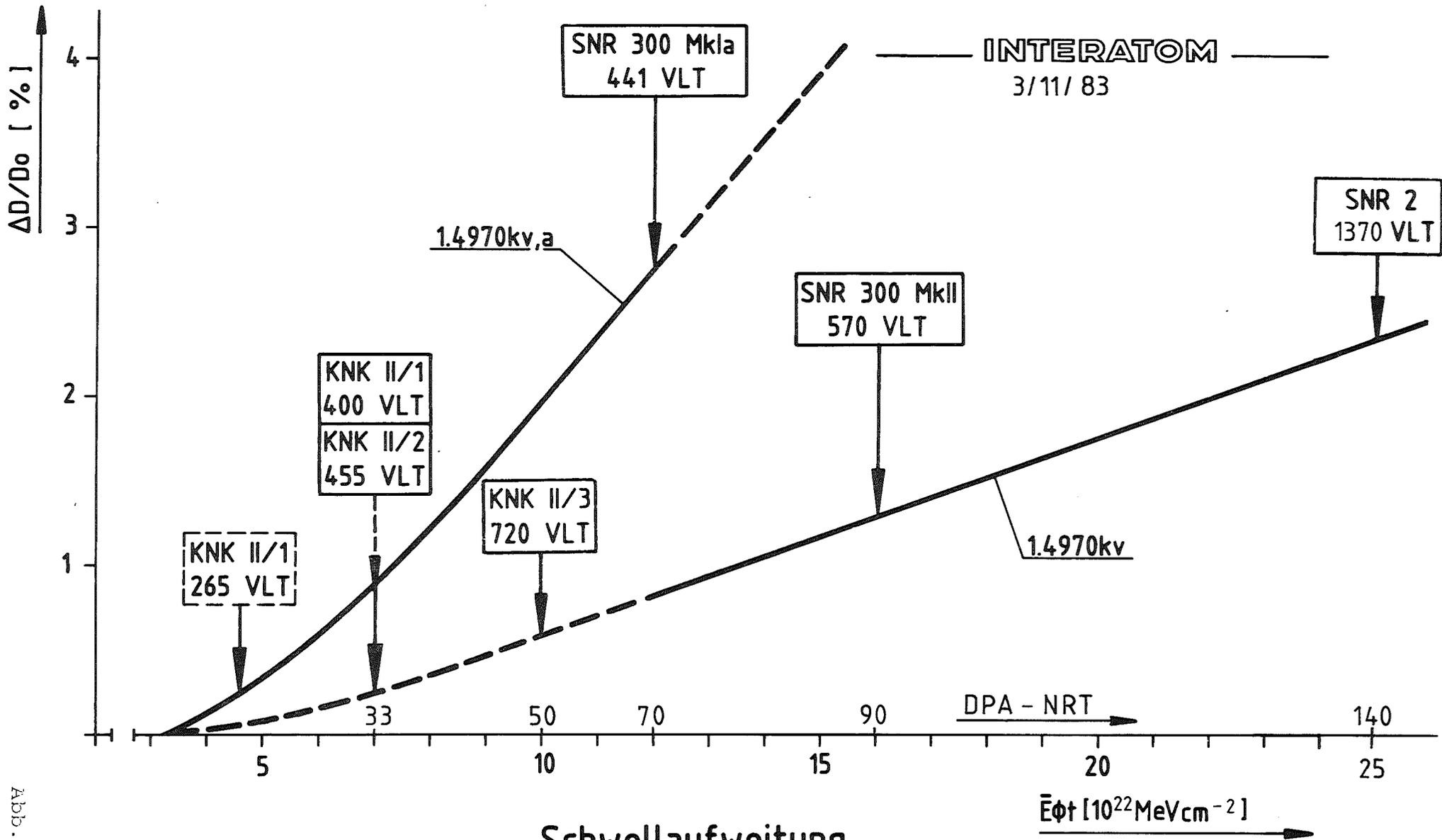
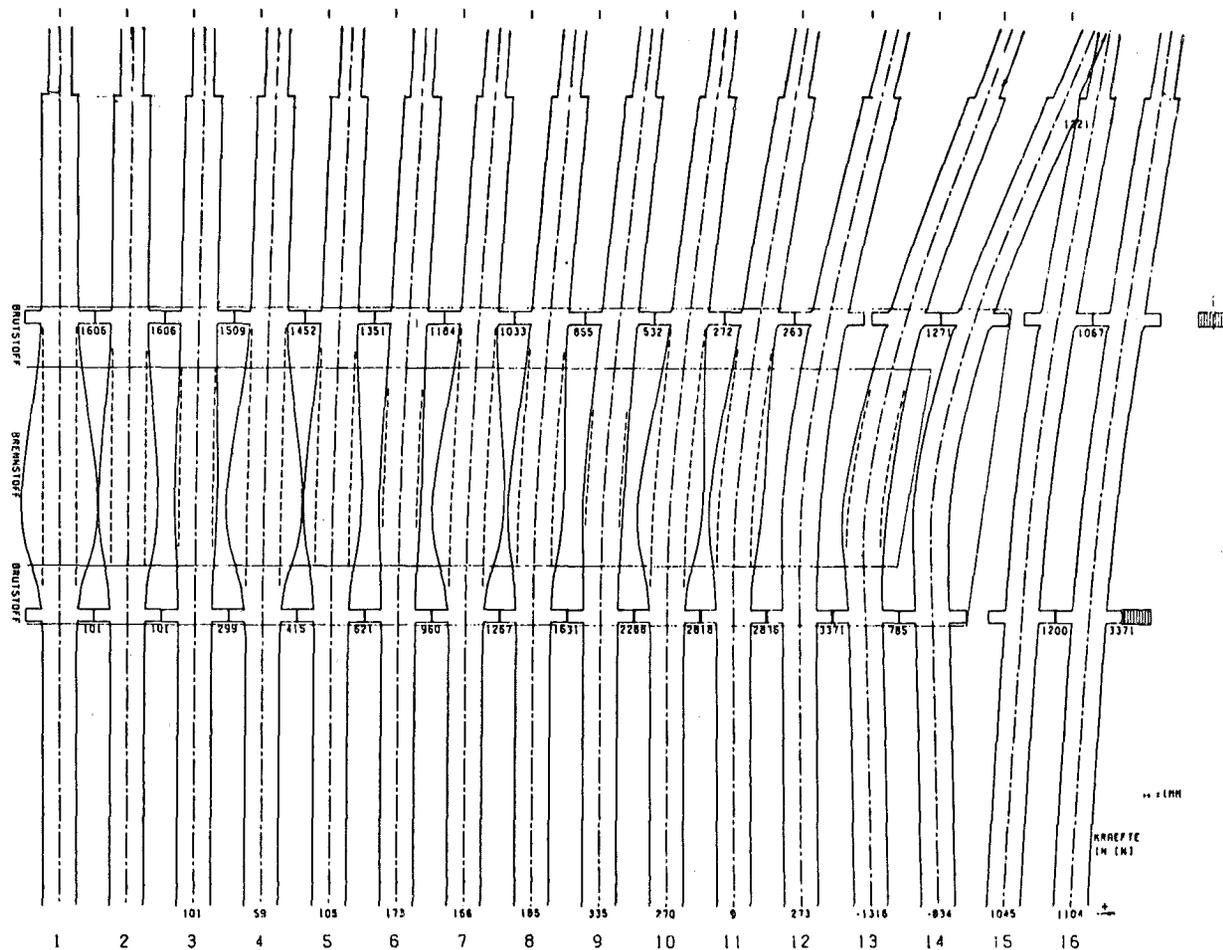


Abb. 4

Schwellaufweitung
 $T = 723 \text{ K}$
 1.4970kv, 1.4970kv, a

INTERATOM



Reaktorkern

03/11/83

KERNVERBAND DES SNR 2

16195/05-81/1

INTERATOM

PRODUKTMERKMAL	SPEZIFIZIERTE WERTE		KRITERIEN
	MK IA	MK II/SNR2	
PU-GEHALT [GEW.-%]	30	25/20	- ZENTRALES BRENNSTOFF-SCHMELZEN - LÖSLICHKEIT -(BRUTRATE)
STÖCHIOMETRIE	1.970 + 0.025 - 0.030	1.97 [±] 0.02	- CHEM. WECHSELWIRKUNG BRENNST./HÜLLE - ZENTRALES BRENNSTOFF-SCHMELZEN - LÖSLICHKEIT
MIKROSTRUKTUR	MÖGLICHT HOMOGEN MAX. PU-PARTIKEL-GRÖßE < 300 µM		- MECHAN. WECHSELWIRKUNG BRENNSTOFF/HÜLLE - LOKALES SCHMELZEN - LÖSLICHKEIT
TABLETTENDICHTE [% TD]	86.5	92 - 95.5	- ZIELABBRAND - MECHAN. WECHSELWIRKUNG BRENNSTOFF/HÜLLE - CHEM. WECHSELWIRKUNG BRENNSTOFF/HÜLLE - LÖSLICHKEIT - (BRUTRATE)

Reaktorkern
3/11/83

SPEZIFIKATIONSFORDERUNGEN AN DEN SB-BRENNSTOFF UND ZUGEHÖRIGE KRITERIEN

SAEULENTYPEN DES SNR 2 BASISKERNS

SAEULE NR.1 C1 252 EL.

SAEULE NR.2 C2 162 EL.

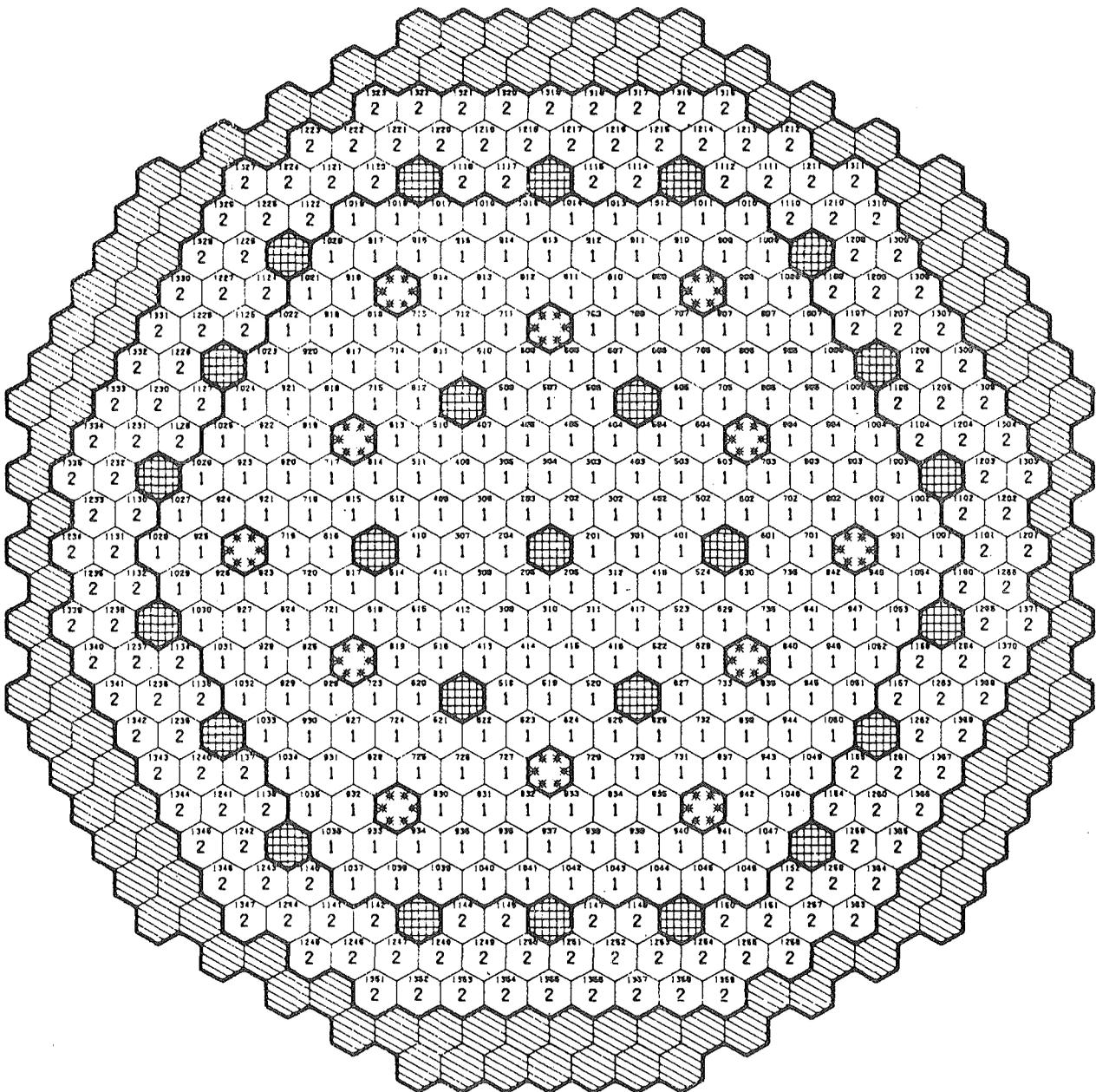
SAEULE  RAD.BLANKET 120 EL.

SAEULE
SAEULE



RTE 25 EL.

ZAE 12 EL.



Reaktorkern

03/11/83

QUERSCHNITT DES SNR 2 BASISKERNS

INTERATOM

PARAMETER	EINHEIT	WERT
<u>BRENNSTAB</u>		
AUBENDURCHMESSER	MM	8,5
HÜLLROHRWANDSTÄRKE	MM	0,565
SPALTSTOFFLÄNGE	M	1,0
BRUTSTOFFLÄNGE	M	2 X 0,30
GESAMTLÄNGE	M	2,70
ANZAHL JE BÜNDEL	-	271

KASTEN

INNENSCHLÜSSELWEITE	MM	170,8
WANDSTÄRKE	MM	4,1
SPALT ZWISCHEN KÄSTEN	MM	6,0

ELEMENT

TEILUNG	MM	185,0
GESAMTLÄNGE	M	4,85

NOM. AUSLEGUNGSBELASTUNGEN

LÄNGENLEISTUNG BOL/EOL	W/CM	480/400
ABBRAND	MWd/kg SM	140
DOSIS	DPA-NRT	140

Reaktorkern

3/11/83

GEOMETRIE- UND AUSLEGUNGSDATEN DER SNR 2
BRENNELEMENTE

INTERATOM

PARAMETER	EINHEIT	WERT
REAKTORLEISTUNG	MW _{th}	3420
ANZAHL: BRENNELEMENTE	-	414
BRUTELEMENTE	-	120
ABSORBERELEMENTE	-	37
STANDZEIT: BRENNELEMENTE	A	4
BRUTELEMENTE	A	6

PU - INVENTAR BOL/EOL : C1	T	4.35/4.26
C2	T	3.66/3.29
ABM	T	- /0.68
RBM	T	- /1.00
PU/SM BOL/EOL: C1	-	.172/.186
C2	-	.224/.220
SM - INVENTAR BOL/EOL: C1	T	25.3/22.9
C2	T	16.3/15.0
AX.BM	T	25.0/24.9
RAD.BM	T	25.5/25.3
PU - VEKTOR, EOL/BOL: PU 238	%	1.0 /0.6
PU 239	%	59.3/57.8
PU 240	%	24.8/28.3
PU 241	%	8.9/5.9
PU 242	%	5.0/5.4
AM 241	%	1.0/2.0
BRUTRATE, INTERN, RADIAL, AXIAL		0.80/0.13/0.20

Reaktorkern

3/11/83

REAKTOR- UND BRENNSTOFFDATEN SNR 2

INTERATOM

- VEREINFACHUNGEN ZUR KOSTENSENKUNG UND BESSEREN ZERLEGBARKEIT

- WEITERE ABBRANDERHÖHUNG

- KONZEPTÄNDERUNG AUF OXIDBASIS
 - . HETEROGENE KERNE
 - . ANDERE (DICKERE) STABDURCHMESSER

- ALTERNATIVE BRENNSTOFFE
 - . KARBID
 - . METALL

Reaktorkern

3/11/83

MÖGLICHE ÄNDERUNGEN DER SCHNELLBRÜTERBRENNNELEMENTE

BRÜTERBRENNSTOFFE: HERSTELLUNG UND ERFAHRUNG

J. Krellmann

ALKEM, Hanau

Seit dem Jahr 1966 fertigt ALKEM Brüterbrennstoffe. Von diesem Brennstofftyp wurden bis 1983 in Summe 4,9 t Keramik hergestellt und zu insgesamt 15.200 Brennstäben verarbeitet. Parallel zu den verschiedenen Fertigungsaufträgen sind eine ganze Reihe von F + E-Arbeiten durchgeführt worden. Dabei handelt es sich um die Entwicklung und Verbesserung von Fertigungsverfahren sowie um die Neu- und Weiterentwicklung der Fertigungsanlagen. Eine große Zahl von F + E-Tätigkeiten ergaben sich aus den laufenden Produktionskampagnen selbst und mußten unter zeitweise hohem Termindruck fertigungsbegleitend durchgeführt werden.

In den vergangenen Jahren wurden auch eine größere Anzahl von Stäben für Bestrahlungsexperimente hergestellt. Der überwiegende Teil der Experimente ist in Zusammenarbeit mit dem Kernforschungszentrum Karlsruhe abgewickelt worden. Um einen Überblick zu geben, was im Hinblick auf die Produktion von Brüterbrennstoffen bislang bei ALKEM hergestellt wurde, dient die Abbildung 1 und eine auftragsbezogene Übersicht, die Abbildung 2.

Näher eingegangen werden soll auf die Fertigungskampagnen für die Kompakte Natriumgekühlte Kernreaktoranlage, abgekürzt KNK II, den Schnellen Natriumgekühlten Reaktor SNR 300, sowie die Bestrahlungsexperimente PHENIX und SAPHIR, die in Abbildung 2 mit einem Balken gekennzeichnet sind.

KNK II, 1. Kern

Die Herstellung der 160 kg Brennstoff entsprechend 1.400 Brennstäben wurde über einen längeren Zeitraum bis zum Jahr 1977 durchgeführt. Als Tablettenmerkmale sind die Dichte von 86 % der theoretischen Dichte sowie der Durchmesser von 5,1 mm zu nennen.

Das Herstellverfahren war unser damaliges Standardverfahren, das auf dem Fließschema der Abbildung 3 zu ersehen ist.

Die Löslichkeit des hergestellten Brennstoffes, d.h. die Menge Plutonium, die vor der Bestrahlung des Mischoxids in 7 molarer Salpetersäure löslich ist, betrug hierbei nur ca. 80 %. Mittlerweile wurde erkannt, daß eine möglichst hohe Löslichkeit in Salpetersäure ohne Zusatz von Flußsäure bei der Wiederaufarbeitung von Brennstoffen von entscheidender Wichtigkeit ist, um den Plutoniumanteil in den Abfällen und den Verlust an erbrütetem Plutonium so gering wie möglich zu halten und um einen sicheren Betrieb der Wiederaufarbeitungsanlage zu gewährleisten.

Die Fertigung des KNK II/1 wurde mit Maßintern begonnen, d.h. auf ein Schleifen der Pellets nach dem Sintern konnte durch eine möglichst exakte Einhaltung von Preß- und Sinterparametern überwiegend verzichtet werden. Die Tabletten, welche nicht innerhalb der vorgegebenen Durchmesser-toleranzen lagen, wurden bei diesem Auftrag über eine Meßmaschine aussortiert und die Pellets mit Übermaß naß geschliffen. Im Verlauf der Fertigung wurde aufgrund von Hantierungs- und somit auch von Dokumentationsproblemen auf die Weiterführung des Maßinterns verzichtet und zu 100 % geschliffen.

Das Einhalten des Sauerstoff/Metall-Verhältnisses des Brennstoffs war bei diesem Auftrag problemlos, da als obere Spezifikationsgrenze der stöchiometrische Wert von 2,0 spezifiziert war, den diese Tabletten sehr schnell bei Lagerung erreichten. Es konnte vorausgesehen werden, daß bei dem angewandten Verfahren und einem niedriger spezifizierten O/Me-Verhältnis Probleme auftauchen würden, was dann auch bei der Nachladung KNK II/2 auftrat.

Aber bevor auf diese Nachladungskampagne eingegangen wird, noch ein Wort zum Betriebsverhalten der KNK II/1-Brennelemente. Es wurde ein Abbrand von 100.000 Megawatt-Tage pro Tonne Schwermetall erreicht. Dieser Wert gehört, weltweit gesehen, zu den Spitzenabbränden für Brüterbrennstoff und ALKEM hofft, daß die Nachladung KNK II/2 ähnlich gutes Betriebsverhalten zeigt, nachdem der Kern am 26. Juni 1983 erstmals kritisch wurde.

KNK II, 2. Kern

Dieser zweite Kern wurde in den Jahren 1979 bis 1982 bei ALKEM gefertigt und bestand aus 220 kg Keramik entsprechend 1.150 Brennstäben. Die Dichte der gesinterten Pellets lag entsprechend den Vorgaben in der Spezifikation bei 92 und 94 % theoretischer Dichte, der Durchmesser der Pellets bei 6,4 mm.

Die Herstellung des Brennstoffs wurde nach zwei Verfahren vorgenommen.

Begonnen wurde mit dem sogenannten Einsint-Verfahren. Diese Bezeichnung ist nicht besonders glücklich gewählt und nur durch das damals als Weiterentwicklung vorgesehene Zwiesintverfahren zu erklären. Es ist hierunter zu verstehen, daß die Ausgangsmaterialien 4 Stunden ohne die Zugabe von Mahlhilfsmitteln gemahlen wurden. Durch diesen Verfahrensschritt sind im Gegensatz zu dem früheren Standardverfahren schon Löslichkeiten von ca. 95 % erreicht werden.

Im Verlauf der Fertigung ist dann auf das Optimierte CO-Mahlverfahren, kurz OCOM-Verfahren, mit Vorkompaktierung und Granulation übergegangen worden. Dabei wurde beim Mahlvorgang ein Mahlhilfsmittel zugegeben, welches bei höheren Mahldauern bis zu 12 Stunden das Anbacken des feinen Pulvers an die Wände der Mühle und an die Mahlkörper verhindert (Abbildung 4).

Durch den Einsatz dieses hoch aufgemahlten Pulvers konnten die für die Wiederaufarbeitung des Brennstoffes benötigten Löslichkeiten besser 99 % erreicht werden. Das OCOM-Verfahren wird wegen des sehr viel niedrigeren Plutoniumgehaltes in modifizierter Form auch bei der Herstellung von Brennstoff für thermische Reaktoren in größerem Umfang angewendet (Abbildung 5).

Wie schon angedeutet, sind bezüglich des Sauerstoff/Metallverhältnisses speziell beim Einsint-Verfahren durch die schnelle Oxidation Probleme bei der Fertigung aufgetreten. Um die vorgegebene Grenze von 1,99 einhalten zu können, mußte die hergestellte Keramik in enger Zusammenarbeit mit dem Stabbetrieb schnellstens in Hüllrohre verfüllt und verschweißt werden. Die anschließende OCOM-Fertigung verlief dann bezüglich dieses Punktes wesentlich besser und ließ es zu, den Keramik- und den Stabbetrieb wieder stärker zu entkoppeln, da länger gelagert werden konnte.

Als Hüllrohrmaterial wurden 3 verschiedene Varianten des Stahls 1.4970 verwendet, die sich in Kaltverformung und Auslagerung unterschieden. Mit gleichen Schweißparametern für die 3 Versionen konnte ein spezifikationsgerechtes Ergebnis erzielt werden. Besondere Probleme gab es nur bei der Füllgasreinheit. Eine Leckage in unserem Heliumgas-system führte zu Werten von unter 95 % Helium im Brennstab. Durch mitlaufend geschweißte Proben wurden wir auf diese Abweichung aufmerksam und der Fehler konnte nach eingehender Suche gefunden und behoben werden.

KNK II, Ringelemente

Gesondert eingegangen werden soll neben diesen größeren Aufträgen auf die Fertigung der KNK II-Ringelemente. Hier wurde neben der Brennstoff-Herstellung nach dem OCOM-Verfahren auch das Amonium-Uranyl-Plutonyl-Carbonat-Verfahren, kurz AUPuC-Verfahren eingesetzt (Abbildung 6).

Es handelte sich hierbei um 2 Brennelemente mit 40 kg Keramik nach dem OCOM-Verfahren und 1 kg nach dem AUPuC-Verfahren mit Plutonium der 2. Generation. Dieses eine Kilogramm wurde durch die Aufarbeitung von KNK II/1-Brennstäben in der MILLI abgetrennt und es gelang somit, die Schließung des Brennstoff-Kreislaufs durch die KNK zu demonstrieren.

Die Dichte der Pellets lag bei 94 % theoretischer Dichte, der Durchmesser der geschliffenen Tabletten bei 6,4 mm und die erzielte Löslichkeit mit beiden Verfahren besser 99 %, wobei die Werte des Cofällverfahrens in der Regel um einige Zehntel % höher liegen als die des Mahlverfahrens.

Zur Einstellung der Dichte waren Zinkstearat-Zugaben von 0,8 bis 1,8 % als Porenbildner notwendig, die über vorlaufende Performance-Tests ermittelt wurden. Der Grund hierfür lag in der erhöhten Sinteraktivität des gemahlten Materials gegenüber der spezifizierten Sinterdichte.

Die Keramik war hinsichtlich ihres Sauerstoff/Metall-Verhältnisses äußerst stabil. Dies ging sogar so weit, daß Keramik, die nach dem Sinterofenausgang unter dem spezifizierten Wert lag, durch Lagern nicht in den spezifikationsgerechten Bereich hineindriftete. In diesen Fällen mußte nachoxidiert werden.

Aus Abbildung 7, welche die Fertigungsdurchsätze des KNK II/2 mit seinen 2 Verfahrensvarianten sowie für die Ringelemente zeigt, ist zu ersehen, daß größere Aufträge, die zu längeren Fertigungszeiträumen führen, mit Durchsatzsteigerungen verbunden sind, was letztlich auch zu Kostensenkungen führt. Die gleiche Abhängigkeit zeigt sich auch bei der Herstellung der SNR 300-Brennstäbe und entspricht den Erfahrungen von Produktionsabläufen im Allgemeinen.

Selbstverständlich können Kostensenkungen auch durch andere Maßnahmen erzielt werden, so z.B. durch die Vergrößerung von Pelletdurchmessern.

SNR 300

ALKEM hat im Rahmen dieses Auftrags 60 % der Brennstäbe des Erstkerns, d.h. 20.400 Stäbe mit zusammen 4 t Keramik zu fertigen. Die Spaltstoff-Anreicherungen betragen bei der C 1-Anreicherung ca. 26 % Plutonium, bei der C2-Anreicherung ca. 37 % Plutonium. Die hohe Anreicherung fertigt ALKEM alleine, die niedrige Anreicherung ALKEM und die Fa. Belgonucléaire gemeinsam.

Das Keramik-Fertigungsverfahren entspricht, wie beim KNK II/1 schon erwähnt, dem früheren Standardverfahren, d.h. die Plutonium-Löslichkeit vor der Bestrahlung liegt bei nur ca. 80 %. Die Produktion wurde in den Jahren 1975/76 im Rahmen der F + E-Vorhaben mit einem sogenannten Probelauf begonnen, der auf Probleme und deren Verbesserungsmöglichkeiten im Hinblick auf die spätere eigentliche Fertigung hinweisen sollte. Im Jahr 1978 wurde dann die Produktion auf der Fertigungslinie II aufgenommen. Der Durchsatz konnte bis zum Februar 1983 auf ca. 600 Brennstäbe pro Monat entsprechend 120 kg Keramik kontinuierlich gesteigert werden. Die sich daran anschließende Produktion nach dem Wechsel auf die Fertigungslinie I konnte bis dato auch schon wieder auf einen Durchsatz von über 500 Brennstäben pro Monat angehoben werden.

Zur Charakterisierung des Brennstoffes ist zu sagen, daß der Pelletdurchmesser bei ca. 5,1 mm liegt und die Dichte nur ca. 86 % der theoretischen Dichte beträgt. Dieser Wert wird hier im Gegensatz zum KNK II/1, wo niedrig sinterndes UO_2 verwendet wurde, durch den Porenbildner Ammonium-Uranyl-Carbonat eingestellt. Die Sinteraktivität des eingesetzten hochsinternden Urandioxids und die unterschiedliche Sinteraktivität der Plutoniumdioxid-Lose werden durch wechselnde AUC-Zugaben ausgeglichen. Besondere Probleme bei der Pelletfertigung ergaben sich durch die sich ändernden physikalischen und chemischen Eigenschaften des Plutoniumdioxids aus dem französischen La Hague. Mit zunehmendem Alter des Materials ergaben sich auch höhere Americium-Gehalte und damit insbesondere in Verbindung mit dem hohen Plutonium-Anteil in der C2-Anreicherung Strahlenbelastungsprobleme für die Mitarbeiter, speziell bei der Teilkörperdosis.

Daß die Verarbeitung dieser Materialien zusammen mit gesteigerten Durchsätzen möglich ist, kann auf die sehr speziellen Abschirmungsmaßnahmen, erhöhte Sauberkeitsanforderungen in den Handschuhkästen sowie nicht zuletzt auf das verbesserte Verhalten der Mitarbeiter vor Ort zurückgeführt werden. Auf diesem Gebiet können aber durch weitere gezielte Verbesserungen und Entwicklungen Fortschritte gemacht werden.

Ein sich im Laufe der Plutoniumdioxid-Anlieferungen erhöhender Gehalt an Plutonium 238 in Größenordnungen bis zu 1,5 % ergab durch die daraus folgende höhere Wärmeentwicklung im Material Probleme mit der Stabilität des Brennstoffs bezüglich des O/Me-Verhältnisses. Die Wärmeleistung lag bei früheren Plutonium-Lieferungen bei ca. 5 Watt/kg Plutonium und ist teilweise in 1983 auf mehr als doppelt so hohe Werte gestiegen. Dies hat eine schnellere O/Me-Drift der Pellets zur Folge, insbesondere bei den Brennstäben mit der hohen C2-Anreicherung von ca. 37 % Plutonium. Die Entkopplung durch Lagerung zwischen Keramik- und Stabtrieb lag früher bei mindestens 2 Monaten und reduziert sich durch diese verringerte Stabilität auf weniger als 1 Woche. Bei erforderlichen längeren Lagerzeiten wurde die Keramik in Kühlschränken aufbewahrt und so einem wesentlichen stabileren Zustand zugeführt. Dieses Verfahren ist jedoch sehr zeitaufwendig.

Erwähnt werden soll auch, daß es im Verlauf der Produktion gelungen ist, die Fertigungsrückläufe zu verringern bzw. soweit sie unvermeidbar sind, wieder zurückzuführen und auch Fertigungsrückläufe aus früheren Herstellungslosen einzusetzen.

Die Stabfertigung setzte zum Verschweißen der Hüllrohre in der Fertigungslinie II eine neue Schweißanlage ein, die mit einer frei programmierbaren Steuerung die Brennstäbe nach dem Füllen mit Helium verschließt. Auch bei dieser Anlage zeigte sich, daß die letztendliche Erprobung die Fertigung selbst darstellt, da auch nach eingehendsten inaktiven und aktiven Probeläufen erst langsam eine annehmbare Leistung bezüglich Qualität und Durchsatz erreicht werden konnte.

Nach dem Wechsel der Produktion auf die Fertigungslinie I ist mittlerweile auch hier eine neue Schweißanlage in Betrieb genommen worden, die nach relativ kurzer Anlaufzeit die in Hüllrohre eingefüllte spezifikationsgerechte Keramik ohne besondere Schwierigkeiten verschweißt. Ein wesentlicher Vorteil dieser Anlage ist, daß das Hüllrohr gegenüber älteren Fertigungsanlagen wesentlich weniger kontaminiert werden kann. Dies ist konstruktiv so gelöst, daß sich nur der unmittelbare Schweißbereich des Rohres im Handschuhkasten befindet, der Rest des Stabes aber außerhalb.

Das verwendete Wolfram-Inertgas-Schweißverfahren könnte im Rahmen einer Neuentwicklung mittelfristig durch ein Widerstands-Preßschweißverfahren ersetzt werden. ALKEM steht hier in Verbindung mit der Firma Reaktor-Brennelement Union, die bereits Erfahrungen mit diesem Verfahren gesammelt hat und wird die schon vorhandenen Erkenntnisse für den Plutonium-Betrieb weiterentwickeln.

Es ist zu begrüßen, daß die während der Produktion auftretenden Probleme über fertigungsbegleitende Entwicklungsprogramme einer Lösung zugeführt werden können. Diese Möglichkeit wurde durch den Arbeitsausschuß F + E, Arbeitsgruppe 8 des SNR 300 gegeben, aber auch viele vorlaufenden F + E-Arbeiten in den vergangenen Jahren, über die entsprechende Berichte verfaßt wurden, sollen in diesem Zusammenhang nicht vergessen werden.

An dieser Stelle soll auch kurz auf die Zusammenarbeit der beiden Fertiger, ALKEM und Belgonucléaire, eingegangen werden. Durch die vertragliche Möglichkeit gegeben, haben viele gemeinsame Treffen stattgefunden und es hat sich im Hinblick auf den SNR 300 eine sehr gute, offene und nutzbringende Zusammenarbeit auf allen Gebieten etabliert, auch unter Einschluß von RBU bezüglich des Assemblierens.

Wie bereits erwähnt, liegt die Plutonium-Löslichkeit des derzeit hergestellten Brennstoffs bei ca. 70 %. Es ist vorgesehen, daß die Nachladungen des SNR 300 mit löslichem Brennstoff ausgeführt werden sollen, ob auch hochdicht, ist noch nicht entschieden. Aber es ist zu erwarten, daß auch bei diesem gegenüber heute geänderten Herstellungsverfahren Probleme auftauchen werden, die über entsprechende F + E-Programme gelöst werden sollten.

Der hochdichte Brennstoff hätte den Vorteil, daß mit niedrigeren Wasserstoffwerten und mit geringerer Sauerstoff/Metall-Drift zu rechnen ist. Die Herstellung niedrigdichter Pellets erscheint jedoch, z.B. durch die hohe Zugabe dichtesenkender Porenbildner, anspruchsvoller gegenüber dem hochdichten Brennstoff und dürfte einen erhöhten Aufwand an Verfahrensentwicklung und Qualitätssicherung bewirken.

ALKEM würde den hochdichten hochlöslichen Brennstoff bevorzugen, da hier die Erfahrungen, welche aus KNK II/2, dem Bestrahlungsexperiment Phénix/Saphir und auch aus der thermischen Fertigung vorliegen, eingebracht werden könnten und das heutige Standardverfahren OCOM zum Einsatz käme.

Zum SNR 300 abschließend noch beispielhaft zwei Entwicklungsprogramme des Qualitätswesens der ALKEM, die über den Arbeitsausschuß F + E, Arbeitsgruppe 8 befürwortet wurden und die Qualitätssicherung erleichtern. Zum ersten handelt es sich hierbei um die Pelletverwechslungsprüfung. Ursprünglich war vorgeschlagen worden, über einen Aktiv-Scanner die mögliche Verwechslung von Pellets aus den zwei Anreicherungen in den Brennstäben zu erkennen. Entwickelt und qualifiziert wurde vom Qualitätswesen der ALKEM jedoch ein passiver Gamma-Scanner (Abbildung 8), der für Plutonium 241 die 208 keV-Linie und für Americium 241 die 60 keV-Linie detektiert und aus dieser Kombination mittels eines Rechenverfahrens und des Wissens um den vorliegenden Isotopenvektor die Prüfung schneller und kostengünstiger durchführen kann.

Des weiteren wurde zur besseren Bewältigung des Datenstromes bei diesem Auftrag ein rechnergestütztes Labor-datensystem entwickelt und installiert, welches heute die umfangreiche Dokumentation im Hinblick auf die anspruchsvollen Spezifikationsanforderungen erst möglich macht.

Bestrahlungsexperimente PHENIX und SAPHIR

Der im Jahr 1982 für beide Experimente in einer gemeinsamen Kampagne hergestellte Brennstoff dient als Mk II-Typ im Hinblick auf die Nachladungen des SNR 300 zur Testbestrahlung, ist hochdicht mit ca. 94 % theoretischer Dichte und hochlöslich, mit Werten besser 99 %.

Gefertigt wurde nach dem OCOM-Verfahren und dem AUPuC-Verfahren, so daß die Ergebnisse der Experimente Rückschlüsse auf beide Verfahren zulassen. In diesem Zusammenhang ist zu unterstreichen, daß ALKEM großes Interesse an Bestrahlungsexperimenten hat, um zur Produktqualifikation und den Einsatzmöglichkeiten Aussagen zu erhalten. Im vorliegenden Fall ist das Einbringen von Stäben in einen französischen Brüter, den PHENIX, besonders interessant.

Bei der Herstellung dieser Bestrahlungsexperimente mit 300 Brennstäben entsprechend 85 kg Keramik konnte zu 90 % auf das Schleifen der Tabletten verzichtet werden. ALKEM wird versuchen, in Zukunft die Fertigung von Schnellbrüterkeramik mit einem Minimum an Schleifen zu bewerkstelligen, was bei den Schnellbrüterdurchmessertoleranzen von $\pm 7/100$ mm erzielbar erscheint. Die entsprechende Weiterentwicklung im Rahmen des SNR 300 ist aufgenommen, wobei wir auch versuchen, die nicht zu vermeidende Schleifarbeit trocken und nicht wie früher naß durchzuführen.

Das Sauerstoff/Metall-Verhältnis der Phénix/Saphir-Tabletten wurde durch gezielte Befeuchtung während der Sinterofenreise eingestellt. Diesem Verfahren sind allerdings dort Grenzen gesetzt, wo zu hohe Befeuchtungen zu verstärktem Auftreten von Sinterrissen führen.

Abschließend noch zwei Entwicklungen von Fertigungsanlagen, mit denen ALKEM bereits einige Erfahrungen gesammelt hat und die auch für die zukünftige Schnellbrüter-Brennstoffherstellung eingesetzt werden können. Es sind dies zwei Beispiele aus einer großen Anzahl von Entwicklungen auf dem Gebiet der Produktionsanlagen, da die Anlagenentwicklung ein immer größeres Gewicht im Rahmen der F + E-Aktivitäten der ALKEM bekommt.

Es handelt sich dabei um eine von ALKEM neu konzipierte Kugelmühle (Abbildung 9), die Mischen, Mahlen und Aufbaugranulieren kann. Die Arbeitsgänge werden zwischen dem Anbringen der Behälter bis zu deren Abkoppeln ohne weitere Handeingriffe ausgeführt, was zu einer erheblichen Reduzierung der Strahlenbelastung an dieser Stelle führt. Die Mühle ist zum Füllen und Leeren schwenkbar und in beide Richtungen drehbar, ein Verschlussmechanismus trennt sie bei den Arbeitsvorgängen gegen die Dosen ab. Daneben kann sie auch für die Aufbereitung von Fertigungsrückläufen eingesetzt werden. Nicht spezifikationsgerechte, gesinterete Pellets können z.B. in dieser Mühle in einem Arbeitsgang gebrochen und nach verfahrenstechnischer Notwendigkeit mehr oder weniger stark aufgemahlen werden.

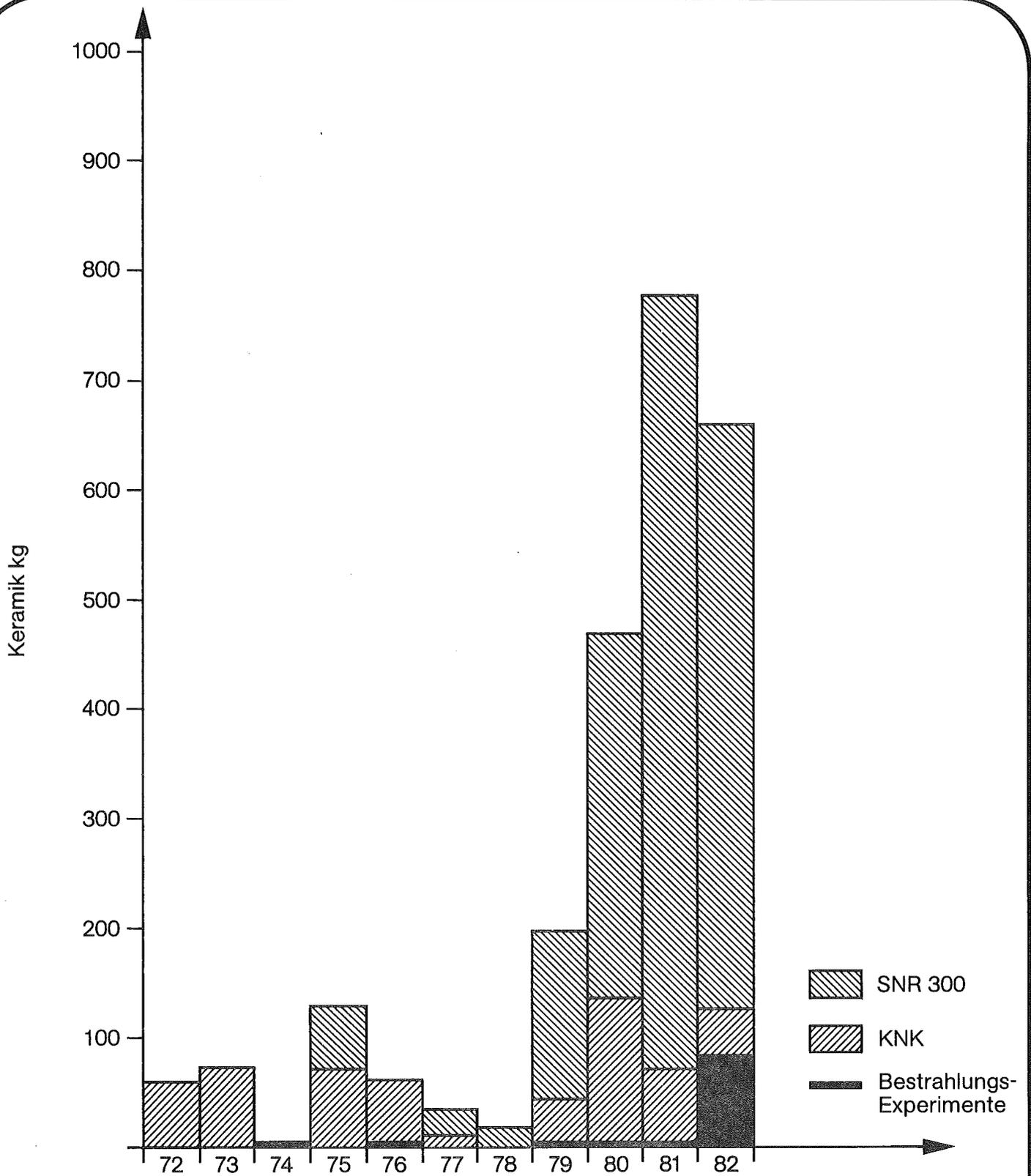
Diese Kugelmühle mit einem Fassungsvermögen von 8-10 kg ist bereits im Plutoniumbetrieb für die Herstellung thermischen Brennstoffes eingesetzt. Es entsteht hier und auch an anderen Stellen der Fertigung der Vorteil, daß sich ein Erfahrungsgewinn und damit auch ein Kostenvorteil für die Herstellung von Schnellbrüter-Brennstoff durch die parallel laufende Produktion für thermische Reaktoren ergibt.

Entsprechendes kann für das zweite Beispiel gelten, eine Rundläuferpresse (Abbildungen 10 und 11), welche sich derzeit noch in der Uranerprobung im Technikum befindet. Sie ist baugleich mit Pressen wie sie in der Uranverarbeitung bei RBU eingesetzt werden und ermöglicht durch ihren mit bis zu 12 Stempeln bestückten Tisch, der kontinuierlich umläuft, wesentlich höhere Stückzahlen bei gleichzeitig besserer Qualität und besser steuerbarem Fertigungsverfahren beim Pressen von Tabletten. Nach eingehender Erprobung mit Uran unter Fertigungsbedingungen, es wurde z.B. ein Teil der SNR 300-Blanket-Pellets hergestellt, wird derzeit die Umschließung des Pressenbereiches mit einem Handschuhkasten vorgenommen. Die Rundläuferpresse soll eine alte Presse in der Fertigungslinie I ersetzen und dort ihre Eignung für hohe Durchsätze mit Mischoxid nachweisen.

Diese Beispiele zeigen Entwicklungen, die sehr fertigungsnah durchgeführt werden. Im Gegensatz hierzu gibt es natürlich auch Beispiele der Verfahrens- und Anlagenentwicklung, die längerfristigen Charakter haben, wie zum Beispiel das Niedrigtemperatur-Kurzzeit-Sintern NIKUSI oder das Heißschlagverdichtungsverfahren HSV.

Zu erwähnen sind hier auch noch die auf dem Gebiet der Verfahrensentwicklung laufenden Untersuchungen zur Brennstoffstruktur, die in enger Zusammenarbeit mit dem Kernforschungszentrum Karlsruhe bearbeitet werden. Es wurden in der Vergangenheit im Rahmen der Kooperation mit der KfK auch schon Mitarbeiter der ALKEM für längere Zeiträume abgestellt und es ist vorgesehen, dies auch in Zukunft bei gemeinsam besonders interessierenden Aufgabenstellungen an Plutonium-Proben weiterzuführen.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, daß ALKEM durch die Herstellung von 4,9 t Brüterbrennstoff heute in den Fertigungsbereichen Konversion, Mischoxid-Brennstoffherstellung, Hülltechnik und auch Assemblieren, letzteres zusammen mit der RBU, über die Erfahrung zur Herstellung der verschiedenen Brennstoffe bzw. Brennstäbe gemäß unterschiedlichen Anforderungen verfügt und es wäre wünschenswert, diese Erfahrungen mit der weiteren Herstellung von Schnellbrüterbrennstoff in Zukunft kontinuierlich erweitern zu können.



10/83

Jährliche Ausbringung SBR-Brennstoff

Abb. 1

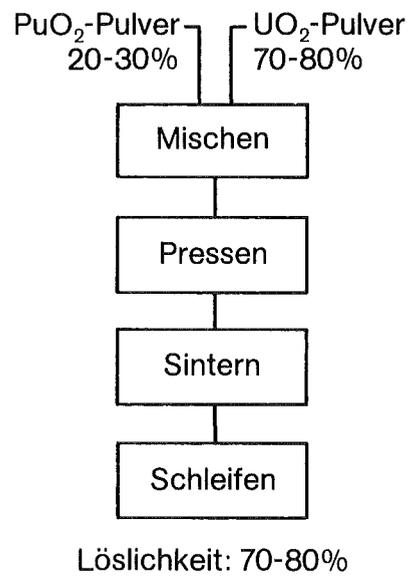
Auftrag		Brennstäbe (Stück)	U + Pu (kg)	Fertigungszeitraum	
Oxid- Brennstoff	SNEAK	(9000 Plättchen) 450	1.870	1966/1967/1968	
	KNK II/1	1.387	140	bis 1977	
		II/2	1.150	191	1979 - 1982
	Ringelemente	210	32	1982	
	SNR-300	11.500	1.900	seit 1979	
	Phénix/Saphir	300	74	1982	Bestr.-Experiment
	RAPSODIE	51	7	1970	Bestr.-Experiment
GSB/PFR/KAKADU/ OPOST/POTOM/etc.	130	20	1968 - 1983	Bestr.-Experimente	
Karbid- Brennstoff	DFR/BR-2/Vg 5	47	22	1968 - 1975	Bestr.-Experimente
GESAMT		~15.200	~4.300		

Schnellbrüterbrennstoff-Fertigung (Stand: August 1983)



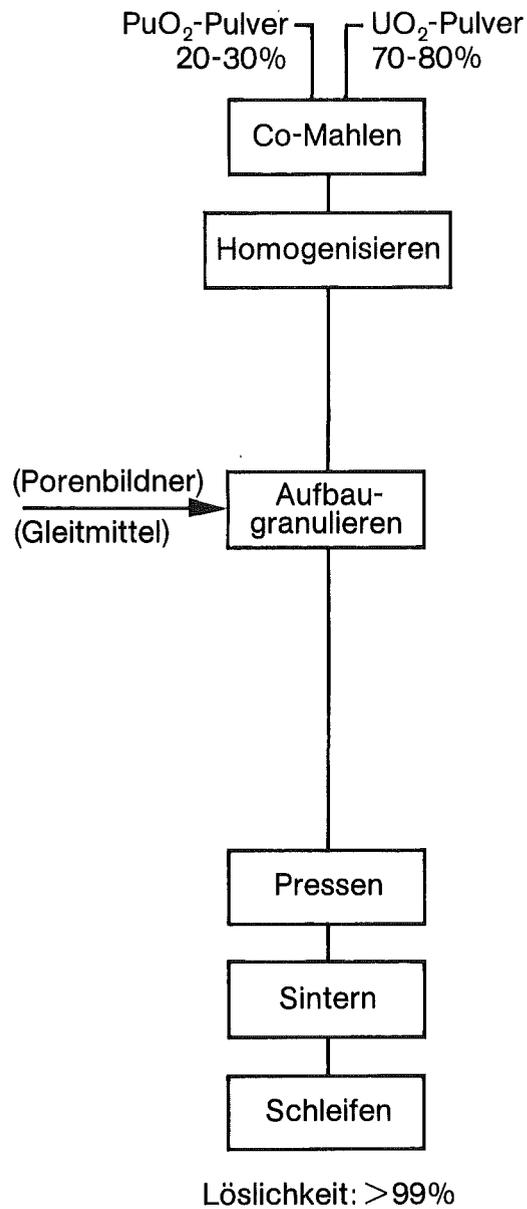
10/83

ehemaliges Standardverfahren



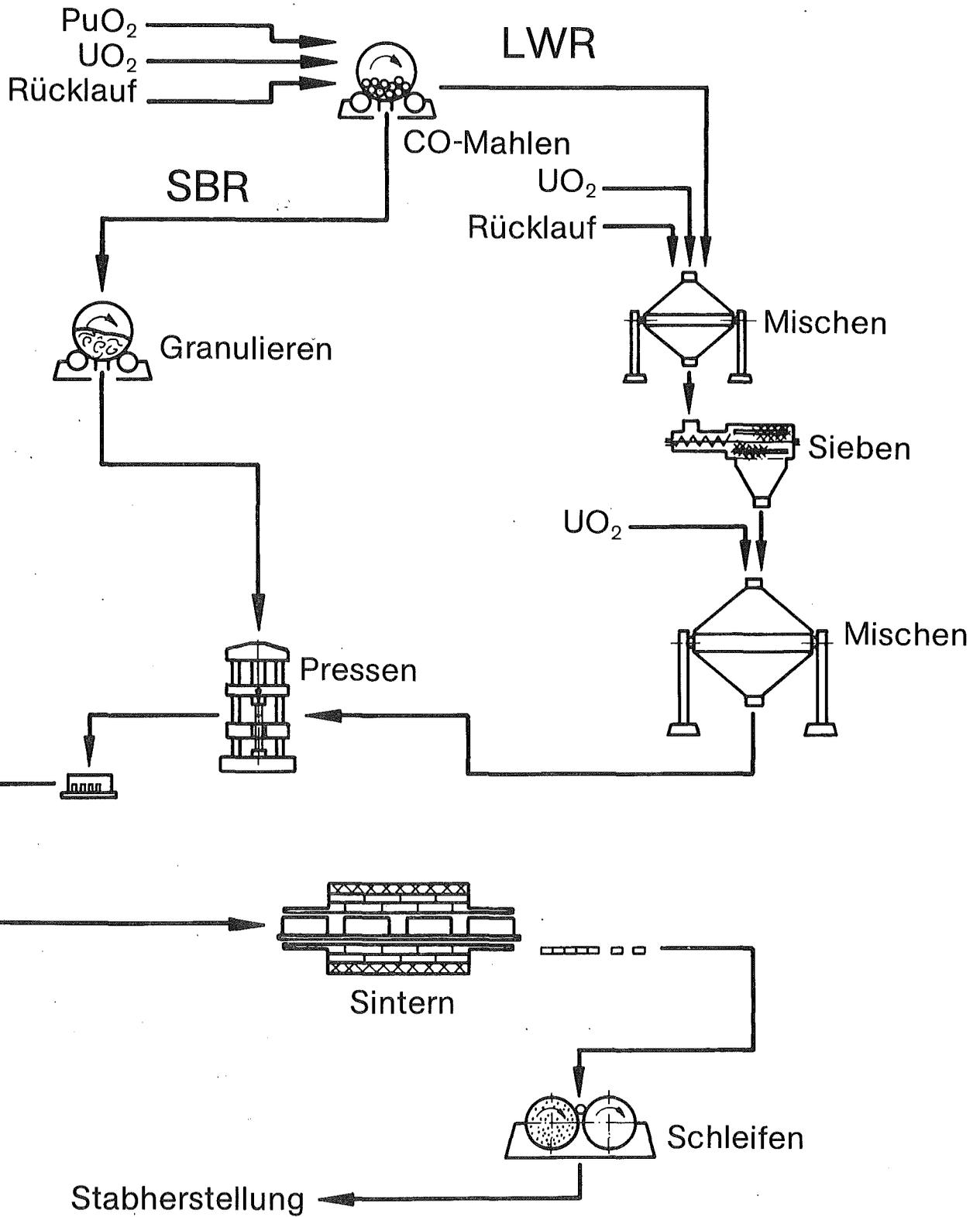
Standardverfahren

OCOM-Verfahren



Optimiertes-Co-Mahl-Verfahren

Abb. 4



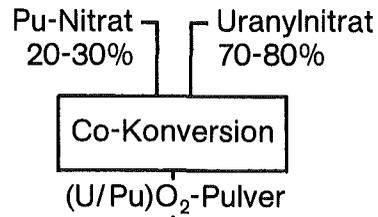
OCOM-Verfahren



10/83

Abb. 5

AUPuC-Verfahren



Pressen

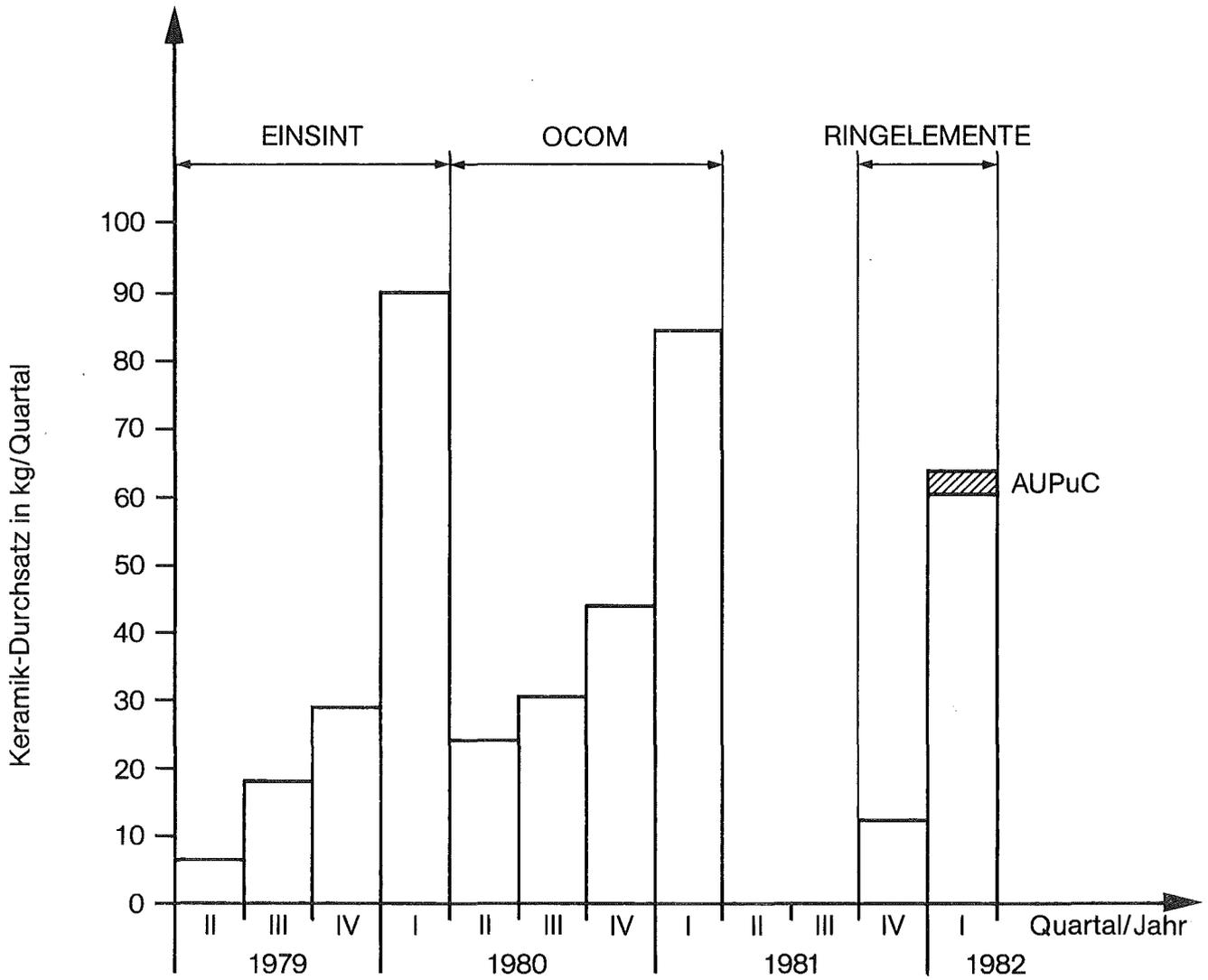
Sintern

Schleifen

Löslichkeit: > 99%



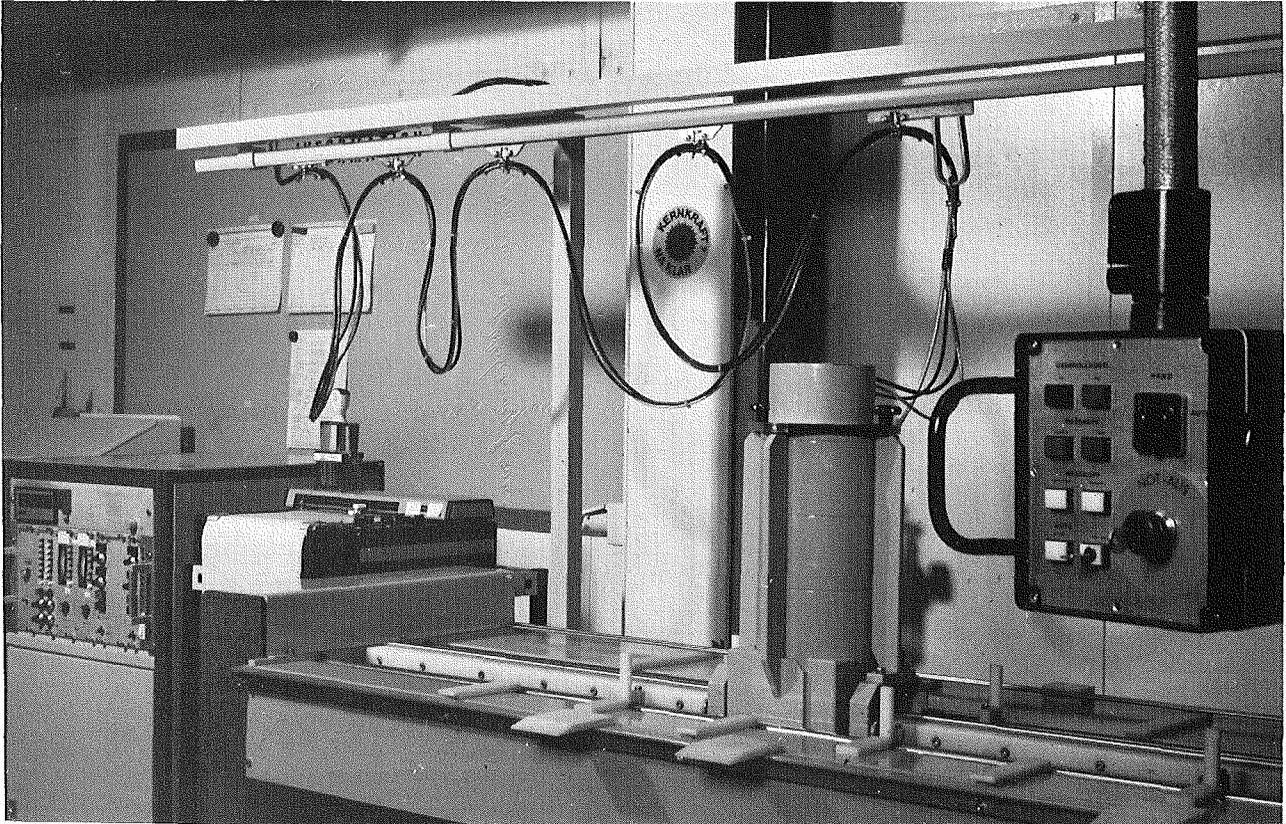
Ammonium-Uranyl-
Plutonyl-Carbonat-Verfahren



März 82

Durchsatz in der Keramikfertigung
KNK II/2 und KNK-Ringelemente

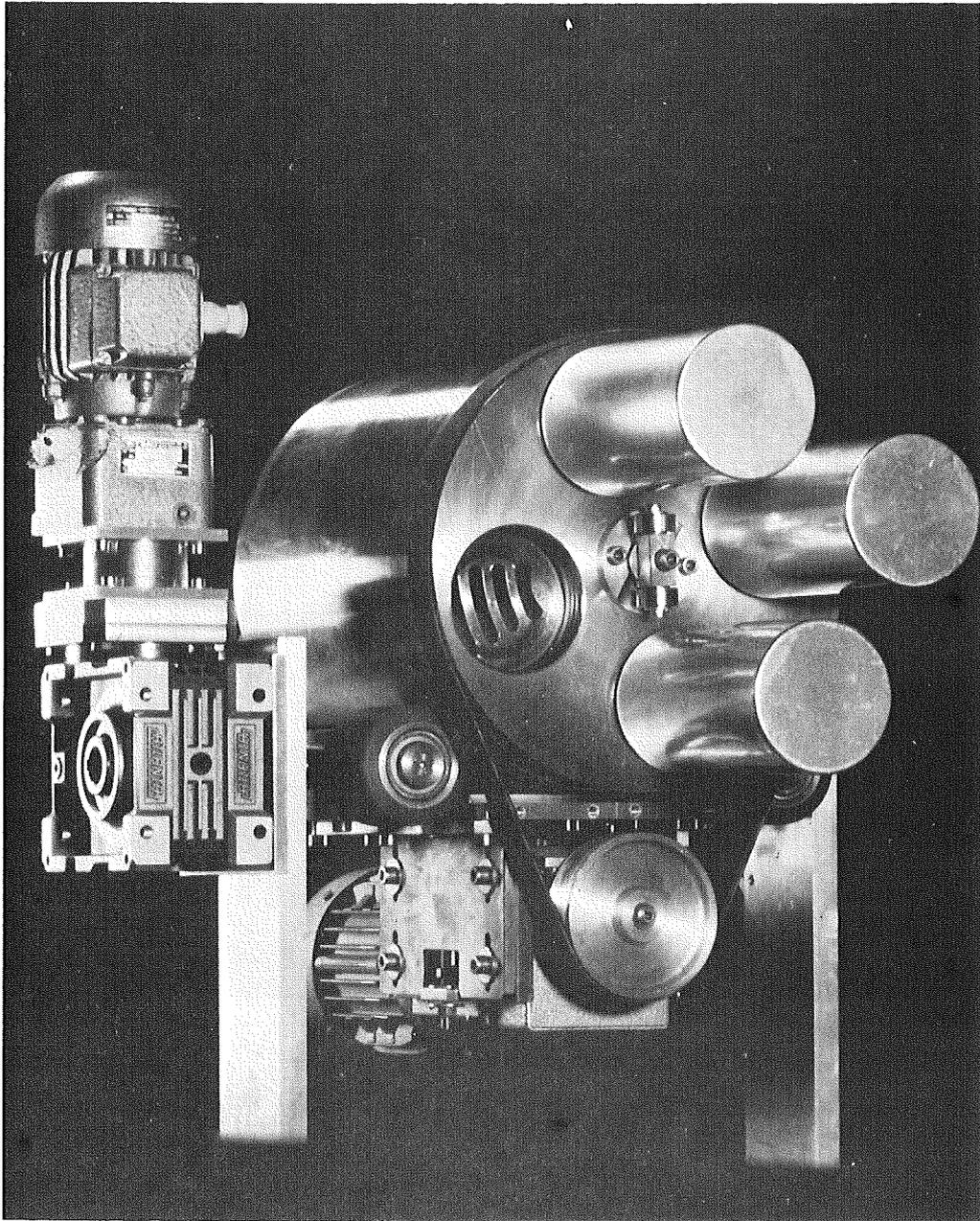
Abb. 7



Gamma-Scanner



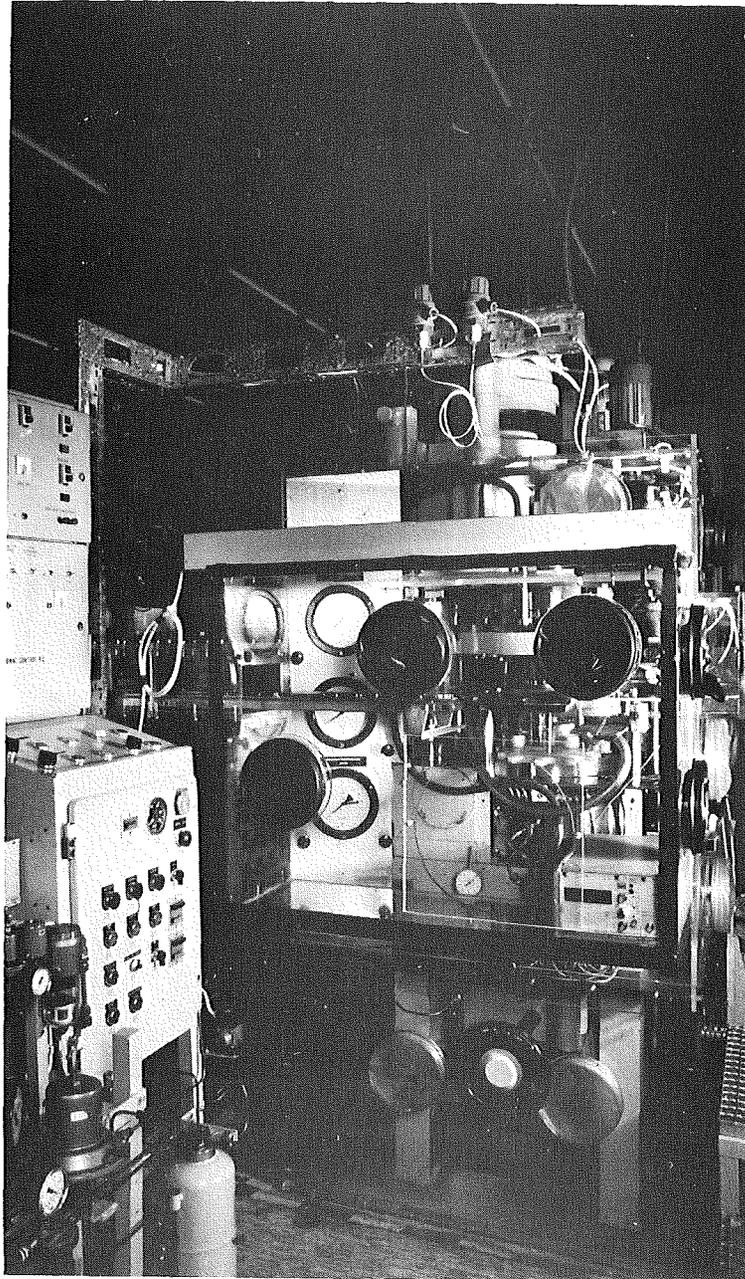
10/83



Kugelmühle



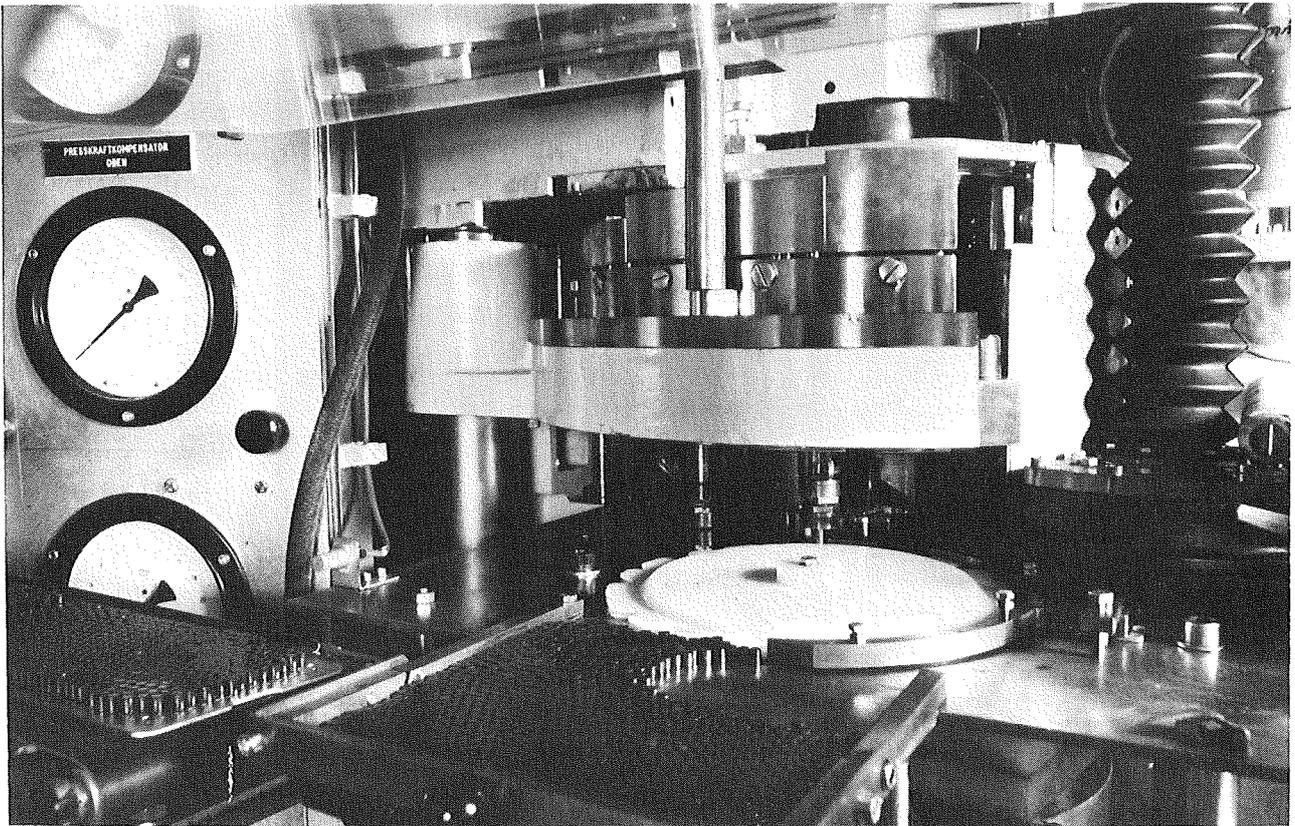
10/83



Rundläuferpresse



10/83



Rundläuferpresse



10/83

LAGERUNG UND TRANSPORT VON BRÜTERBRENNELEMENTEN

G.W. Köhler, H. Lahr

Kernforschungszentrum Karlsruhe

Deutsche Gesellschaft für Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen,
Hannover

1. Einführung

Da im Inland bekanntlich keine Anlage vorhanden ist und auch mittelfristig keine verfügbar sein wird, die Brüterbrennstoff im technischen Maßstab wiederaufarbeiten kann, sind Zwischenlösungen erforderlich. Die im PSB laufenden Arbeiten zum mechanischen Teil des Brennstoff-Kreislaufs dienen überwiegend einer solchen Zwischenlösung für die Entsorgung der KNK II (Kompakte natriumgekühlte Kernenergieanlage) im Kernforschungszentrum Karlsruhe (KfK).

Sie tragen meist mit dazu bei, Grundlagen für eine künftige Pilot-Anlage zur Aufarbeitung von Brüterbrennstoffen zu schaffen. Zur Vermeidung von eventuellen Engpässen wurden auch Back-up-Lösungen untersucht.

Es ist vorgesehen, die ersten drei Cores der KNK II in der Anlage TOR in Marcoule (Frankreich) aufarbeiten zu lassen. Für die der eigentlichen Wiederaufarbeitung vorzuschaltenden Phase wurde als Referenz-Verfahren folgender Ablauf festgelegt (Bild 1):

1. Einbüchsen der BE einer Core-Ladung in der KNK
2. Transport zum Mehrzweckforschungsreaktor (MZFR) im KfK
3. Zwischenlagerung im MZFR
4. Transport zur Heißen Zelle Nr. 1 im Gebäude 701 des KfK und Einschleusen
5. Nach dem Zerlegen Einbüchsen der Brennstäbe in der Heißen Zelle und Ausschleusen
6. Rücktransport zum MZFR
7. Erneutes Zwischenlagern im MZFR
8. Abtransport zur Wiederaufarbeitungsanlage TOR.

Entsprechend den Verfügbarkeitsterminen befinden sich die einzelnen Vorhaben und Ausrüstungs-Komponenten für das Referenz-Verfahren in unterschiedlichen Bearbeitungsstadien.

2. Einbüchsen, interner Transport und kurzes Zwischenlagern von Brennelementen der KNK II

2.1 Grundsätzliches

Die abgebrannten Brennelemente (BE) läßt man nach der Entnahme aus dem Reaktor solange im Natriumlager der KNK abklingen, bis sie ohne Zwangskühlung und in Argon als wärmeübertragendes Medium transportiert und gelagert werden können. Nach einer Reinigung in der Natrium-Waschanlage der KNK /2/ werden sie mit einer Einbüchsstation in der KNK in dicht verschließbare Büchsen verpackt. Das Einbüchsen hat den Zweck, Kontamination durch defekte oder während des Transportes oder der Zwischenlagerung defekt gewordene BE zu verhindern, interkristalline Spannungsriß-Korrosion infolge Sensibilisierung zu vermeiden und das kontaminationsfreie Einschleusen der BE in eine kontaminierte Heiße Zelle zu ermöglichen.

Die Büchsen werden mit einem speziellen Abschirmbehälter für interne Transporte (der sogenannten Henschel-Flasche) einzeln zunächst zum MZFR gebracht und dort im Lagerbecken nach dem für BE üblichen Verfahren unter Wasser entladen und in neuen speziellen Gestellen zwischengelagert.

Zu entwickeln waren insbesondere die Einbüchsstation und die BE-Büchse. Die Einbüchsstation und die benötigte Anzahl Büchsen befinden sich nach erteilter Genehmigung bei der Firma NTG Nukleartechnik, 6460 Gelnhausen, in einer fortgeschrittenen Fertigungsphase.

2.2 Brennelement-Büchse

Die BE-Büchse (Bild 2), die ein BE aufnehmen kann, besteht aus rostfreiem Stahl (Werkstoff Nr. 1.4301) und wurde für einen Innendruck von 6 bar ausgelegt. Sie ist mit Deckel knapp 2,5 m lang und hat einen Innendurchmesser von 150 mm.

Der Kopf der Büchse besitzt ein Vielnutprofil, das in ein entsprechendes Profil der Henschel-Flasche und einer Schleusstation eingreift und damit eine Verdrehsicherung bildet. Der Büchsenfuß ist so ausgebildet, daß er an eine Schub- und Zugvorrichtung in der Henschel-Flasche gekoppelt werden kann.

Die Büchse wird durch einen Deckel nach Art einer Bajonett-Kupplung und mit einer flachen Dichtung aus einer Al/Mg-Legierung verschlossen.

Der Büchsenkopf und der Deckel besitzen je zwei ringförmige konzentrische Schneiden. Beim Schließvorgang dringen diese Schneiden in die Dichtung ein. In Versuchen wurde diese Dichtungsart als günstig ermittelt.

Die Dichtheits-Anforderung beträgt 10^{-5} Torr·l·s⁻¹. Es wurde nachgewiesen, daß die Leckrate auch nach thermischen Schocks und Stoßbelastungen weit unter dem zulässigen Wert liegt.

2.3 Einbüchsen der Brennelemente

Den Einbüchsvorgang in der KNK zeigt Bild 3. Dabei befindet sich die Henschel-Flasche in vertikaler Position auf einem Tieflader in der LKW-Schleuse und ragt durch eine große Luke in die darüber liegende Verladehalle hinein.

Die Einbüchsstation wird mit einer Adapterplatte auf die Henschel-Flasche gesetzt. Die BE-Transportflasche der KNK, in der sich ein BE befindet, wird dann auf der Einbüchsstation abgesetzt.

Die Einbüchsstation besteht im wesentlichen aus einer abgeschirmten Kammer, die oben und unten Öffnungen mit Schiebern besitzt. Innen ist eine Verschieß-Vorrichtung für BE-Büchsen.

In der Henschel-Flasche befindet sich eine BE-Büchse, die ein Stück angehoben wird, damit ihr Oberteil in die Einbüchsstation hineinragt. Das BE wird aus der Transport-Flasche in die Büchse abgelassen und die Büchse verschlossen.

Die Verschieß-Vorrichtung führt dabei drei Bewegungen mit Hilfe elektromotorischer Antriebe aus.

Der neben der Büchse bereitgehaltene Deckel wird

- über die Öffnung der Büchse gefahren
- auf die Büchse gesetzt sowie
- um ca. 60° gedreht.

3. Einschleusen der Brennelemente und Ausschleusen der Brennstäbe der KNK II an der Heißen Zelle

3.1 Grundsätzliches

Die in Büchsen im Becken des MZFR zwischengelagerten Brennelemente (BE) werden aus den Lagergestellen entnommen und unter Wasser einzeln in die Henschel-Flasche verladen. Sie werden dann entsprechend der Arbeits-taktzeit zu den Heißen Zellen befördert und dort mit einer Schleusstation in die Zelle Nr. 1 der mit Beton abgeschirmten Zellen gebracht.

Nach der Zerlegung /3 u.4/ werden die vereinzelt Brennstäbe in 103 mm-Büchsen verpackt, und das Ausschleusen erfolgt ebenfalls mit der Schleusstation unter Verwendung einer Adapter-Büchse. Letztere wird mit Inhalt in die Henschel-Flasche verladen und zum MZFR transportiert. Dort wird die Adapter-Büchse aus der Henschel-Flasche unterwasser entladen, die 103 mm-Büchse entnommen und zwischengelagert. Hierfür werden eine Anzahl von Positionen der für BE-Büchsen dimensionierten Gestelle mit Adaptern versehen.

Umfangreiche Entwicklungsarbeiten erforderten die Schleusstation und insbesondere das Verfahren zum Verpacken der Brennstäbe. Die Station ist ebenfalls bei der Firma NTG in der Herstellung und die Komponenten für das Verpacken der Brennstäbe sind bei der Firma NUKEM in 6450 Hanau in Auftrag.

3.2 Die Schleusstation

Das Einschleusen der BE und das Ausschleusen der vereinzelt Brennstäbe in die bzw. aus der Heißen Zelle wird von dem an der äußeren Schmalseite vor der Zelle befindlichen Schleusraum aus durchgeführt. Hierzu positioniert man die Schleusstation (Bild 4) vor der in eine Strahlenschutz-tür der Zelle eingebauten Drehschleuse. Hinter der Schleusstation wird die auf einen Hubwagen gelegte Henschel-Flasche angedockt.

Die Schleusstation besitzt ein Rohr, das in der Betriebsposition durch die geöffnete Drehschleuse in der Tür und damit durch die Abschirmung der Zelle hindurchragt. Sie ist ebenfalls mit einer Drehschleuse ausgerüstet, so daß sie, wenn die Henschel-Flasche nicht da ist, die Abschirmung übernehmen kann. Im vorderen Teil des Rohres der Schleusstation befindet sich eine nach dem Doppeldeckel-Prinzip arbeitende Vorrichtung zum Öffnen und Schließen der BE-Büchse und an der Mündung ein Deckel zum kontaminationsfreien Schleusen durch die dichte Barriere der Zelle.

Beim Einschleusen eines BE z.B. wird zuerst der Deckel der Schleusstation mit demjenigen der Zellenöffnung in der dichten Barriere zu einem Doppeldeckel zusammengekoppelt und zur Seite geschwenkt. Die Büchse wird aus der Henschel-Flasche in die Schleusstation bis zur Dichtung einer Verschlußglocke geschoben. Dann öffnet man die Büchse, in dem ihr Deckel durch Drehen der Büchse mit der Verschlußglocke zusammengekoppelt sowie gleichzeitig entriegelt und mit einer Hilfsvorrichtung in die Zelle herausgenommen wird.

Das BE kann nun ebenfalls mit der Hilfsvorrichtung aus der Büchse in die Zelle gezogen werden.

3.3 Verpackung der KNK-II-Brennstäbe

Zur Anlieferung der Brennstäbe in der Wiederaufarbeitungsanlage TOR in Marcoule werden von dem CEA folgende Auflagen gemacht:

- Verpacken der Brennstäbe in Büchsen von dem Typ, wie sie für den Reaktor PHENIX verwendet werden (Bild 5).
- Die Büchsen sind außen quasi kontaminationsfrei anzuliefern.

Die wesentlichen Unterschiede dieser "CEA-Büchse" gegenüber der BE-Büchse sind ein Durchmesser von nur 103 mm und ein dichtgeschweißter Deckel.

Erschwerend kommt weiter hinzu, daß es im Gebäude 701 weder geeignete Einrichtungen zum Dekontaminieren noch eine saubere Zelle gibt. Eine Kontamination der 103 mm-Büchse muß daher von vornherein weitestgehend verhindert werden. Außerdem ist in der Zelle Nr. 1 weder eine zweite geeignete Schleuse vorhanden noch aus Platzgründen nachträglich einbaubar und ein Umrüsten der Schleuse vom Arbeitsaufwand her gesehen undiskutabel.

Es wurde ein Verfahren konzipiert, daß nicht nur die CEA-Anforderungen erfüllt, sondern darüber hinaus auch keine zweite Schleuse sowie keine Änderungen an der Schleusstation und der Henschel-Flasche erfordert.

Die wichtigsten Komponenten hierfür außer den 103 mm-Büchsen sind:

- eine Adapter-Büchse für die 103 mm-Büchse und
- eine halbautomatische Vorrichtung zum fernbedienten Verschweißen des Deckels an der 103 mm-Büchse.

Mit Hilfe der Adapter-Büchse (Bild 6) wird eine 103 mm-Büchse in der Henschel-Flasche und in der Schleusstation wie eine BE-Büchse gehandhabt. Die Adapter-Büchse besitzt ebenfalls einen Deckel mit Bajonett-Kupplung. In der Adapter-Büchse befindet sich eine Hülse, die herausgezogen werden kann, so daß sie ein Stück in die Heiße Zelle ragt. Die 103 mm-Büchse befindet sich in dieser Hülse, die sie bis auf eine kleine Ringfläche an der Mündung vor Kontamination schützt.

Die 103 mm-Büchse wird sofort nach dem Befüllen mit Brennstäben verschlossen.

Die Einrichtungen zum Zuschweißen bestehen im wesentlichen aus einem feststehenden für fernbedientes Arbeiten angepaßten Schweißkopf. Während des Schweißvorganges wird die Büchse um ihre Achse gedreht. Vorgesehen ist das WIG-Impulsschweißverfahren. Zubehör sind eine spezielle Fernsehanlage zur Schweißnaht-Kontrolle und Geräte für eine anschließende Dichtheitsprüfung.

Nach dem Verschließen wird die kleine in der heißen Zelle freie Oberfläche der Büchse dekontaminiert.

4. Behälter für den externen Transport von KNK II-Brennstäben

Eine Überprüfung vorhandener Behälter ergab, daß kein geeigneter für den wirtschaftlichen Transport der Brennstäbe in 103 mm-Büchsen existiert, mit dem auch die in der Anlage TOR in Marcoule zulässigen Maximalwerte für das Gewicht und die Abmessungen eines Behälters einzuhalten wären.

Nach einer PSB/IT-Spezifikation wurde von der Firma Transnuklear GmbH in 6450 Hanau im Rahmen einer Systemstudie ein angepaßter Transportbehälter konzipiert (Bild 7). Als günstig erwies sich ein Behälter aus globularem Grauguß mit einer Kapazität von acht 103 mm-Büchsen und einem Gewicht von 18,4 t /6/.

Bei der Auslegung wurde von einer Mischbeladung ausgegangen, d.h. es wurde der Transport von Test- und Treiber- oder Brutelementen gemeinsam im Behälter vorgesehen. Dies erfolgte, da die Testelemente überproportional zur Wärme- und Strahlenproduktion beitragen. Eine Beladung nur mit Testelementen würde eine dickere Abschirmung bedingen, die bei Beladung z.B. nur mit Treiberelementen zu einem unwirtschaftlichen Verhältnis von Gesamtgewicht zu Nutzlast führt.

Ursprünglich als Back-up-Lösung gedacht, falls eine Vereinzelung der Brennstäbe in fremden Heißen Zellen notwendig werden sollte, wurde auch ein Transportbehälter mit Bleiabschirmung konzipiert (Bild 8). Ein Übergang zu dieser Bauweise war nötig, um innerhalb des Gewichts-Limits von 20 t einen ca. 1 m längeren Innenraum passend für BE zu ermöglichen. Für die längeren Brennstäbe des SNR-300 ist voraussichtlich diese Bauart zweckmäßig, wenn diese ebenfalls in der Anlage TOR wiederaufgearbeitet werden.

5. Lange Zwischenlagerung von Brennelementen der KNK II

5.1 Allgemeines

Es wurden nach einer PSB-Spezifikation von den Firmen Kraftwerk Union AG, NUKEM GmbH und Transnuklear GmbH Konzeptstudien bezüglich der Zwischenlagerung von 10 Core-Ladungen der KNK II durchgeführt. Die Untersuchungen erstreckten sich auf die drei Methoden Naß-Lager, Trocken-Lager und Behälter-Lager.

Die wichtigsten Ergebnisse der einzelnen Studien sind folgende: Alle drei Methoden würden den vorgesehenen Zweck erfüllen und voraussichtlich genehmigungsfähig sein. Am günstigsten wäre ein Standort in der Nachbarschaft des Reaktors innerhalb des KNK-Areals unter weitestgehender Mitbenutzung der vorhandenen Infrastruktur.

Der Betrieb des BE-Lagers würde von der Warte des KNK-II aus überwacht.

Die Arbeiten bei der Ein- und Auslagerung könnten mit zwei bis drei Mann durchgeführt werden. Während der Lagerung wäre kein ständiger Aufenthalt von Personal im Lagergebäude nötig.

5.2 Naß-Lager /7/

In einem gegen Flugzeugabsturz schützenden Gebäude befinden sich das Brennelement(BE)-Lagerbecken mit Kompakt-Lagergestellen (Bild 9).

Die BE werden unterwasser in Büchsen gelagert, die mit Schutzgas gefüllt sind. Die Abfuhr der Nachzerfallswärme erfolgt mit in das Becken hineingehängten Kühlern über Zwischenkreisläufe und Trockenkühler an die Luft.

Für die Handhabung der Büchsentransportflasche und der gebüchsten BE ist ein Brückenkran vorgesehen.

5.3 Trocken-Lager /8/

Das Trocken-Lager ist im Prinzip eine Heiße Zellen-Anlage (Bild 10). In einer Lagerzelle werden gebüchste BE vertikal in einem Gestell gelagert.

Die Handhabung der BE-Büchsen erfolgt mit einem Brückenkran, der einen Greifer besitzt.

Von einer Warte aus wird das Ein- und Ausschleusen der BE überwacht bzw. gesteuert. Die Warte besitzt zwei Strahlenschutzfenster, von denen aus der Schleusbereich und die Lagerzelle eingesehen werden können.

Zur Unterstützung beim Positionieren des Kranes dient eine Fernsehkamera an der Laufkatze des Kranes.

Die zu bevorzugende Bauweise arbeitet mit einer passiven Luftkühlung mit einem geschlossenen Primär- und einem offenen Sekundär-Kreislauf sowie einem Wärmetauscher dazwischen.

5.4 Behälter-Lager /9/

Das Behälter-Lager besteht im wesentlichen aus einer als Witterungsschutz und zusätzliche Strahlenabschirmung dienenden Lagerhalle und darin untergestellten Transport-/Lagerbehältern (Bild 11). Das Abladen und Aufstellen der Behälter in der Halle erfolgt mit einem Brückenkran. Die zur Kühlung benötigte Luft tritt an den Hallenseiten ein und durch Öffnungen im Dach wieder aus.

Die Bauweise der Transport-/Lagerbehälter (Bild 12) ist im Prinzip sehr ähnlich derjenigen der Transportbehälter gemäß Bild 7. Die Kapazität ist sieben gebüchste BE. Zugrunde gelegt wurde ebenfalls eine Mischbeladung mit maximal zwei Testelementen. Das Behältergewicht beträgt 36 t.

Die Behälter müssen nicht nur die für den Transport nötige Typ-B-Zulassung besitzen, sondern auch die zusätzlichen Anforderungen für die Lagerung erfüllen. Entsprechend werden sie mit einer zusätzlichen Schutzhaube ausgerüstet und auf Dichtheit überwacht.

Das Beladen der Behälter erfolgt im Lagerbecken des MZFR.

5.5 Auswertung, Vergleich und Auswahl

Die wichtigsten Daten der drei Lagerarten sind in Tabelle 1 sowie die Vor- und Nachteile in Tabelle 2 gegenübergestellt.

Das Naß-Lager hat Vorteile hinsichtlich der erprobten Technologie, ist aber aufgrund umfangreicherer Ver- und Entsorgungseinrichtungen größer und dementsprechend teurer.

Günstig würde sich die Anwendung der Unterwasser-Zerlegung /5/ von BE auswirken.

Das Trocken-Lager ergibt die kompakteste Bauweise und die kostengünstigste Variante. Es benötigt wenig Ver- und Entsorgungseinrichtungen. Es liegen jedoch bisher wenig Erfahrungen mit dieser Lagervariante vor und die Genehmigung wäre ein Präzedenzfall.

Das Behälter-Lager ist die flexibelste Lagermethode hinsichtlich Aufbau, Veränderungen, Erweiterungen und Stilllegung. Es benötigt keine Entsorgungseinrichtungen für radioaktive Abfälle und auch sonst wenig Infrastruktur; die Ansprüche an den Standort sind damit ebenfalls gering.

Nachteilig ist eine zusätzlich notwendige Be- und Entladeeinrichtung für die Behälter (Wasserbecken oder Heiße Zelle).

Die Errichtungszeit ist kurz; die Investitionen werden nicht auf einmal fällig. Erfahrungen mit dieser Variante sind bisher nicht vorhanden, jedoch wird das Behälter-Lager in Deutschland seit einiger Zeit im LWR-Bereich bevorzugt.

Die einzelnen Vor- und Nachteile sind natürlich unterschiedlich zu bewerten. Insgesamt gesehen ist die Zwischenlagerung in Transport-Lagerbehältern mindestens für die bei KNK II in Betracht kommenden Mengen die günstigste Lösung. Dies ist nicht nur durch die Zahl der

Tabelle 1

Zwischenlager für KNK II - Brennelemente

		NaBlager	Trockenlager	Behälterlager
Lagerkapazität		324 BE	315 BE	315 BE
Gebäude	{ Länge (m)	28	26	39,7
	{ Breite (m)	26 ¹⁾	16	17,5
	{ Höhe (m)	27	18	11,5
Umbauter Raum (m ³)		ca. 11000	ca. 5200	ca. 8000
Lagerbecken bzw. -zelle	{ Länge (m)	9,23	6,3	2)
	{ Breite (m)	6,25	5,8	
	{ Höhe (m)	8,01	9,6	
Baukosten ca. (DM)		50 Mio	15 Mio	34 Mio ³⁾
<p>1) Grundplatte</p> <p>2) 45 Transport-Lagerbehälter</p> <p>3) Erstinvestitionskosten einschließlich 4 Behälter: 7,5 Mio DM</p>				

Tabelle 2

Vor- und Nachteile der drei Lagervarianten

Naßlager	Trockenlager	Behälterlager
<ul style="list-style-type: none"> - übliche Technik wie bei LWR-BE - Zerlegung der BE im Becken möglich - oftmals genehmigt 	<p style="text-align: center;"><u>V o r t e i l e :</u></p> <ul style="list-style-type: none"> - niedrige Kosten 	<ul style="list-style-type: none"> - hohe Flexibilität - Trend bei Zwischenlagerung von LWR-BE - Kosten streckbar - keine radioaktiven Abfälle - kaum Infrastruktur nötig
<ul style="list-style-type: none"> - hohe Kosten 	<p style="text-align: center;"><u>N a c h t e i l e :</u></p> <ul style="list-style-type: none"> - Präzidenzfall für Genehmigung - im Störfall aufwendige Fernbedienung 	<ul style="list-style-type: none"> - zusätzliche Beladeeinrichtung nötig

Vorzüge bedingt, sondern alleine die Flexibilität würde eine solche Entscheidung bereits rechtfertigen. Da Lagerpositionen einheitlicher Abmessungen entfallen können und Behälter auch bezüglich ihrer Bauweise entsprechend dem Bedarf herstellbar sind, stellen nur die Tragfähigkeit des Kranes und die Kranhakenhöhe Grenzen dar, innerhalb derer man jedoch frei ist. So könnten auch hochaktive Abfälle verschiedener Art, die bei der Wiederaufarbeitung anfallen, gelagert werden. Es würde auch die Möglichkeit bestehen, kleine Mängen, z.B. eine Core-Ladung, zunächst in einem anderen Zwischenlager mit unterzustellen.

Der Nachteil einer zusätzlich notwendigen Beladeeinrichtung für die Transport-Lagerbehälter wiegt dagegen nicht schwer, da man wohl davon ausgehen kann, daß im KfK mindestens ein BE-Becken hierfür zur Verfügung stehen wird.

Aufgrund dieser Studien wurde im Konzept für die Pilot-Anlage MILLI II für das Eingangspufferlager ein Behälter-Lager vorgesehen sowie die Möglichkeit BE umzuladen, z.B. von einem Behälter für ein BE in einen Behälter für bis zu 7 BE.

5.6 Versuchsbehälterlagerung

Auf den bisherigen Arbeiten aufbauend ist vorgesehen, in einem Lagerversuch sieben BE aus der KNK II in einem Behälter im MZFR ca. zwei Jahre zwischenzulagern. Drei BE werden hierfür in den Heißen Zellen instrumentiert. An den BE und den Büchsen sollen Temperatur-Verläufe gemessen werden. Über eine Kr-85-Detektion soll auf mögliche Hüllrohrdefekte geschlossen werden. Weitere Messungen verschiedener Art sind am Behälter geplant.

Die Kopf- und Fußteile der BE werden in den Heißen Zellen abgetrennt, damit das Gewicht des Behälters verringert werden kann. Der Grund hierfür sind Probleme bezüglich der zulässigen Belastbarkeit des Kranes im MZFR.

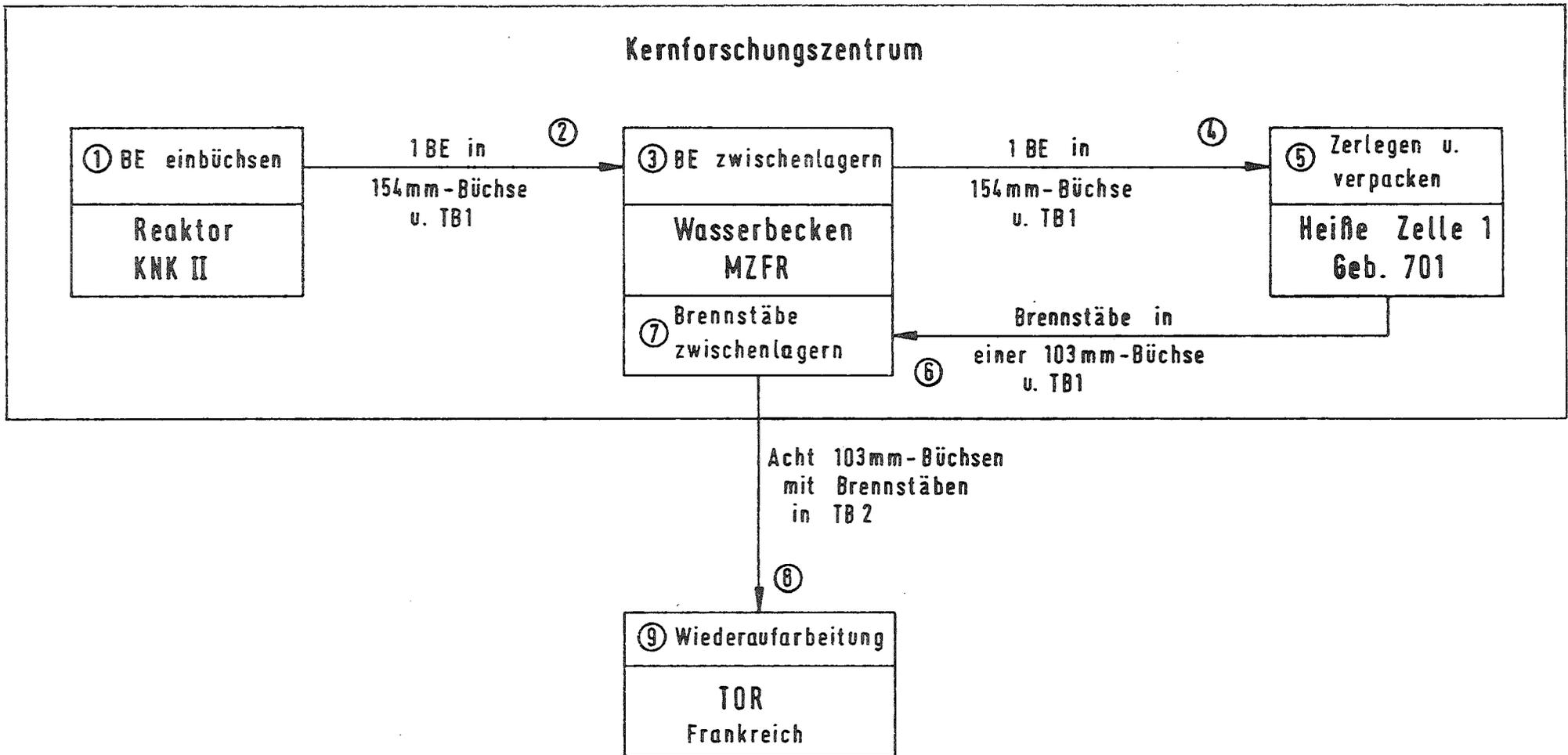
Der Zweck dieses Versuches ist die Demonstration der Lagerung von Schnellbrüter-BE in Behältern und damit die Erleichterung künftiger Genehmigungen.

Literatur-Hinweise

"Technologische Fragen des Brüterbrennstoff-Kreislaufes"

KfK-Bericht 3278, März 1982:

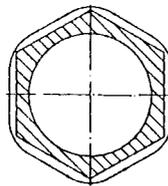
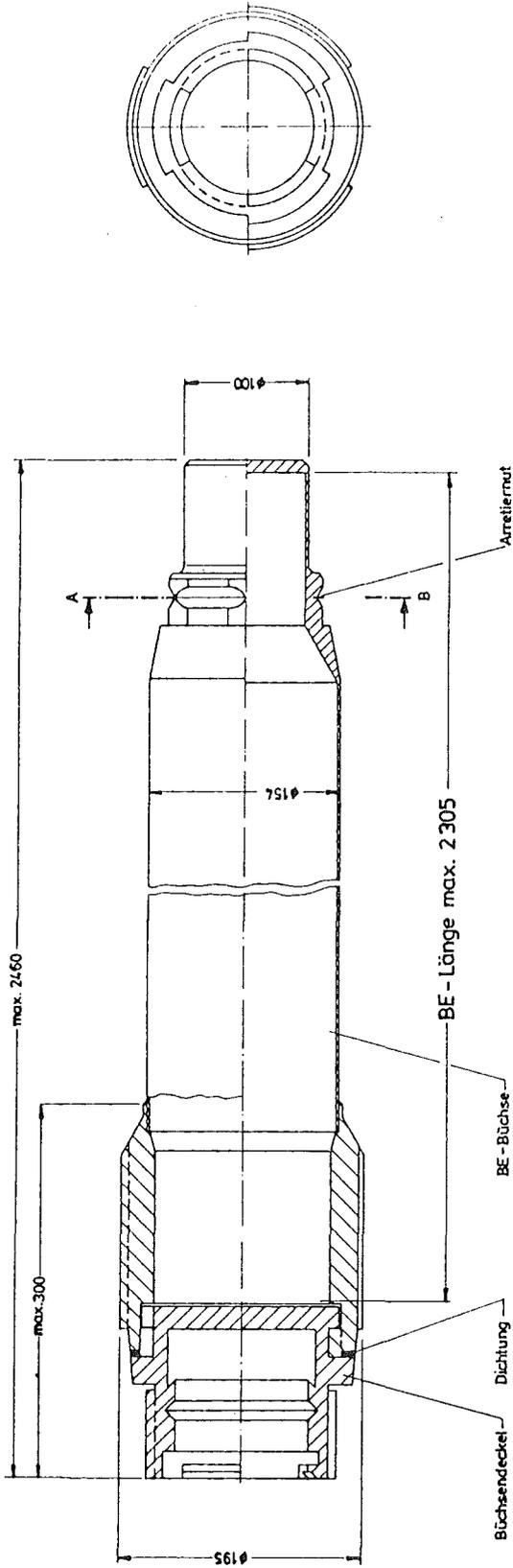
- /1/ G. Schnetgöke, KfK, PSB/PL:
Das Referenzkonzept zur Entsorgung der KNK II
- /2/ K.Ch. Stade, H. Breitländer, KBG und H.H. Stamm, KfK, IRCH:
Die Entfernung des Natriums von Brennelementen
- /3/ G. Bestenreiner, Interatom:
Zerlegen von Brennelementen mit Gitterabstandshaltern
- /4/ H. Enderlein, W. Kathol, KfK, KTB bzw. PSB/PL:
Die Zerlegung und Nachuntersuchung des ersten und zweiten defekten KNK II-Brennelementes
- /5/ K. Knecht, KWU:
Unterwassertechnik zur Reparatur von LWR-Brennelementen und deren Anwendung für die Zerlegung von KNK II-Brennelementen
- /6/ R. Chrst, Transnuklear:
Brüterspezifische Probleme bei Brennelement-Transporten und Behälterauslegung
- /7/ K. Wasinger, KWU:
Konzeptstudie zur Zwischenlagerung von KNK II-Brennelementen unter Wasser
- /8/ P. Arntzen, A. Gasch, NUKEM:
Konzeptstudie zur Zwischenlagerung von KNK II-Brennelementen in einem Blocklager
- /9/ W. Bergmann, G. Dries, R. Lang, Transnuklear:
Konzept zur Zwischenlagerung bestrahlter KNK II-Brennelemente in Transport-/Lagerbehältern.



**Bild 1: Entsorgung des Reaktors KNK II
Referenz - Verfahren**

BE = Brennelement
 TB1 = Abgeschirmter Behälter für interne Transporte
 TB2 = Abgeschirmter Behälter für externe Transporte

KNK = Kompakte Natriumgekühlte Kernenergieanlage
 MZFR = Mehrzweck-Forschungsreaktor
 TOR = Wiederaufarbeitungsanlage für Schnellbrüter-Kernbrennstoff in Marcoule, Frankreich



Schnitt A - B

Bild 2

Zustimmung		Abmessung		Toleranz		Anmerkung	
1	2	3	4	5	6	7	8
Bezeichnung		Material		Zustimmung		Anmerkung	
7500 Kartägen		7500 Kartägen		7500 Kartägen		7500 Kartägen	
1:2,5		1:2,5		1:2,5		1:2,5	
Büchse für ein KNK II - BE		Büchse für ein KNK II - BE		Büchse für ein KNK II - BE		Büchse für ein KNK II - BE	
TOFV-2-38		TOFV-2-38		TOFV-2-38		TOFV-2-38	

Die Firma...
 1. Auflage
 1950

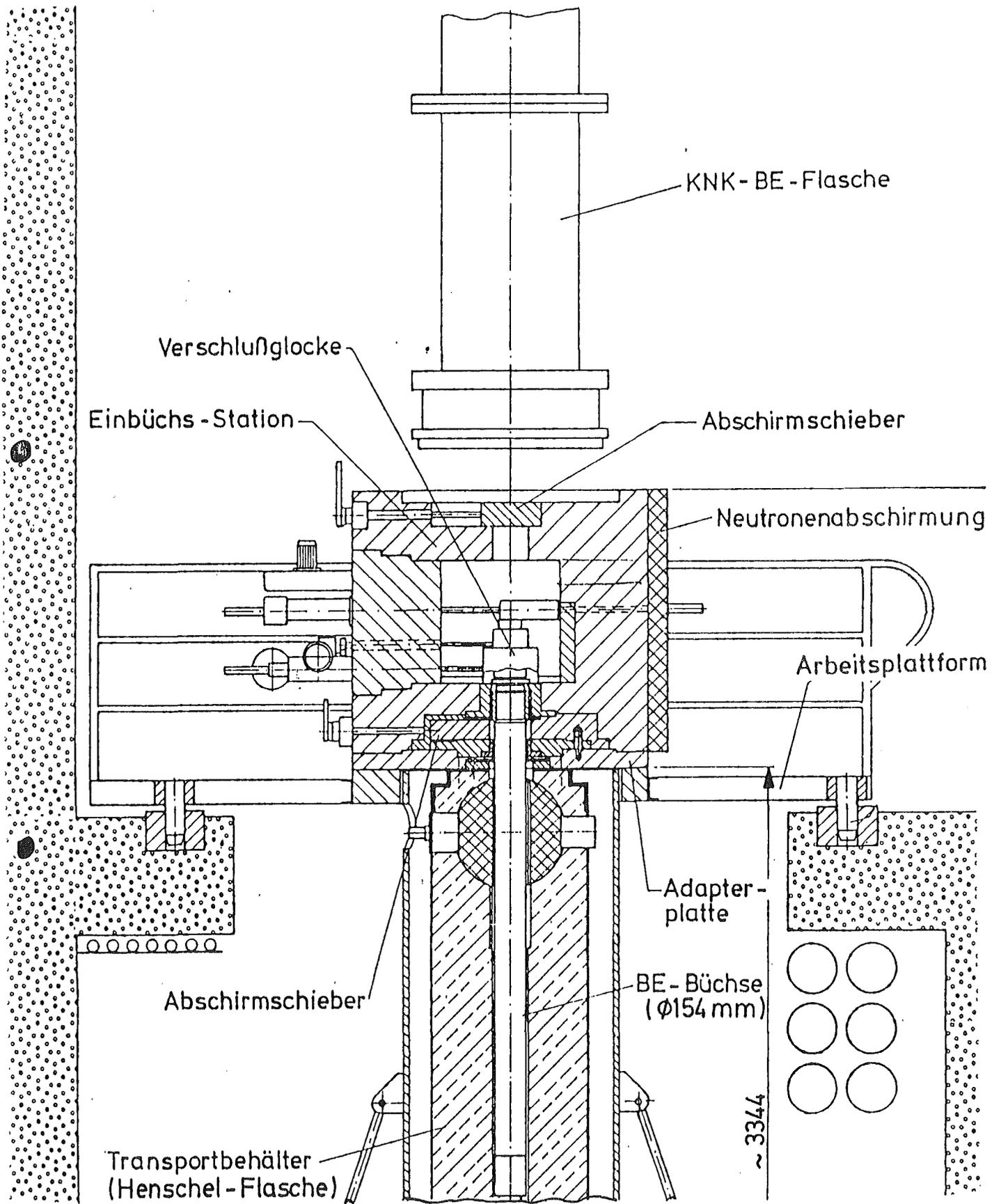
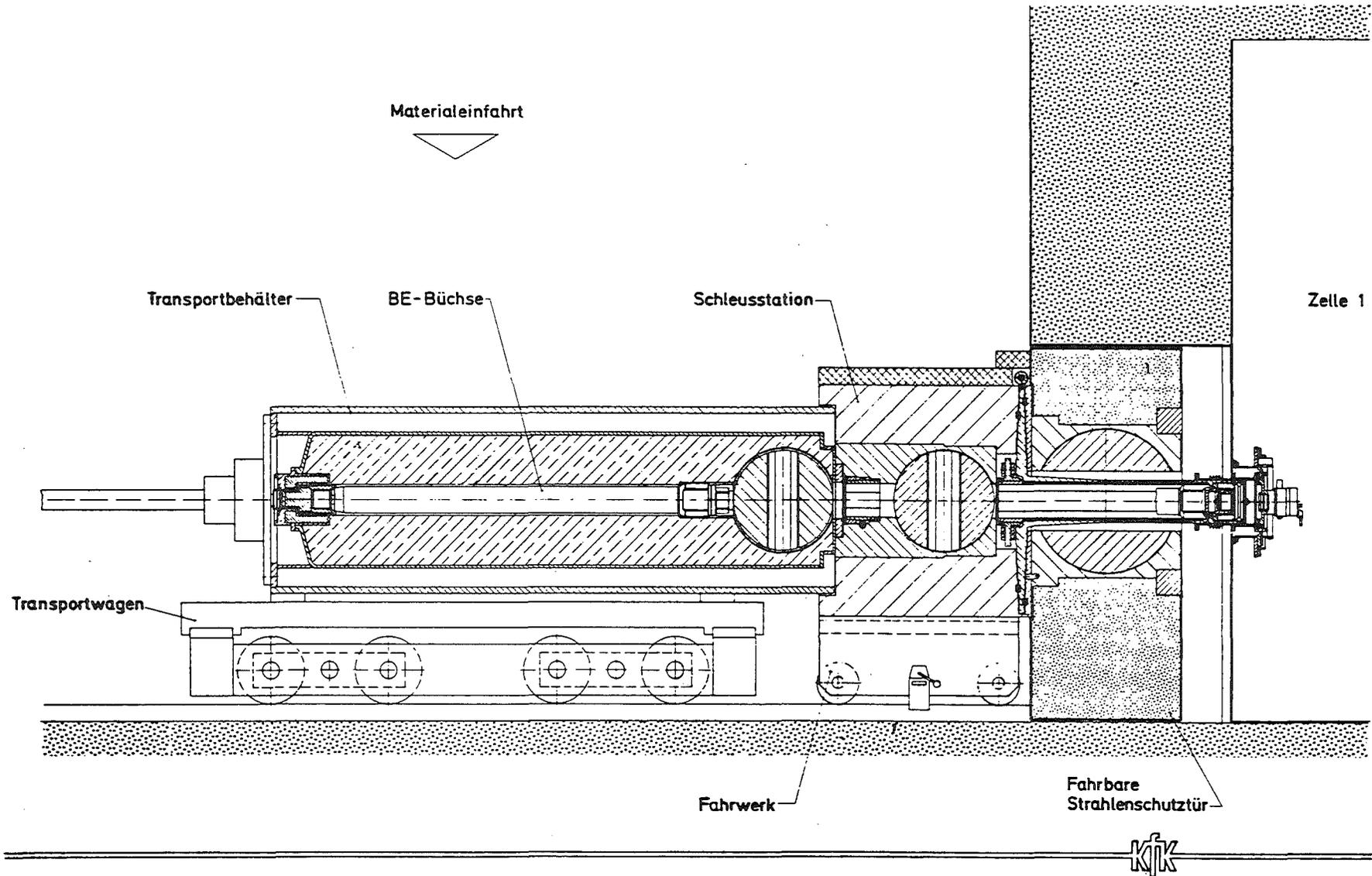


Bild 3 : Einbüchsen der KNK II - BE

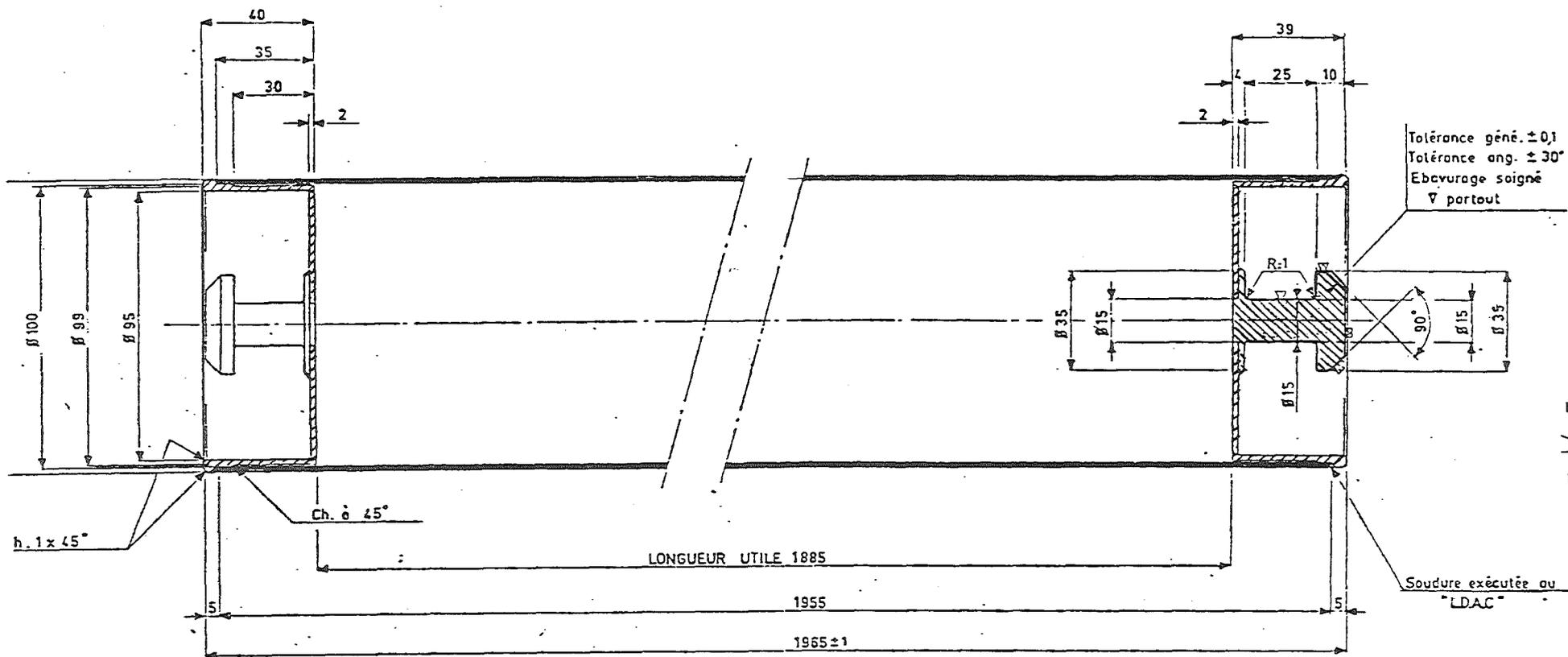


- 70 -

Bild 4 : Anordnung der Schleuskomponenten (M 1:10) zum Einbringen bestrahlter KNK-II-Brennelemente in die Heißen Zellen

TOFV-1-45

Bild 5 : 103 mm - Büchse (CEA-Muster)



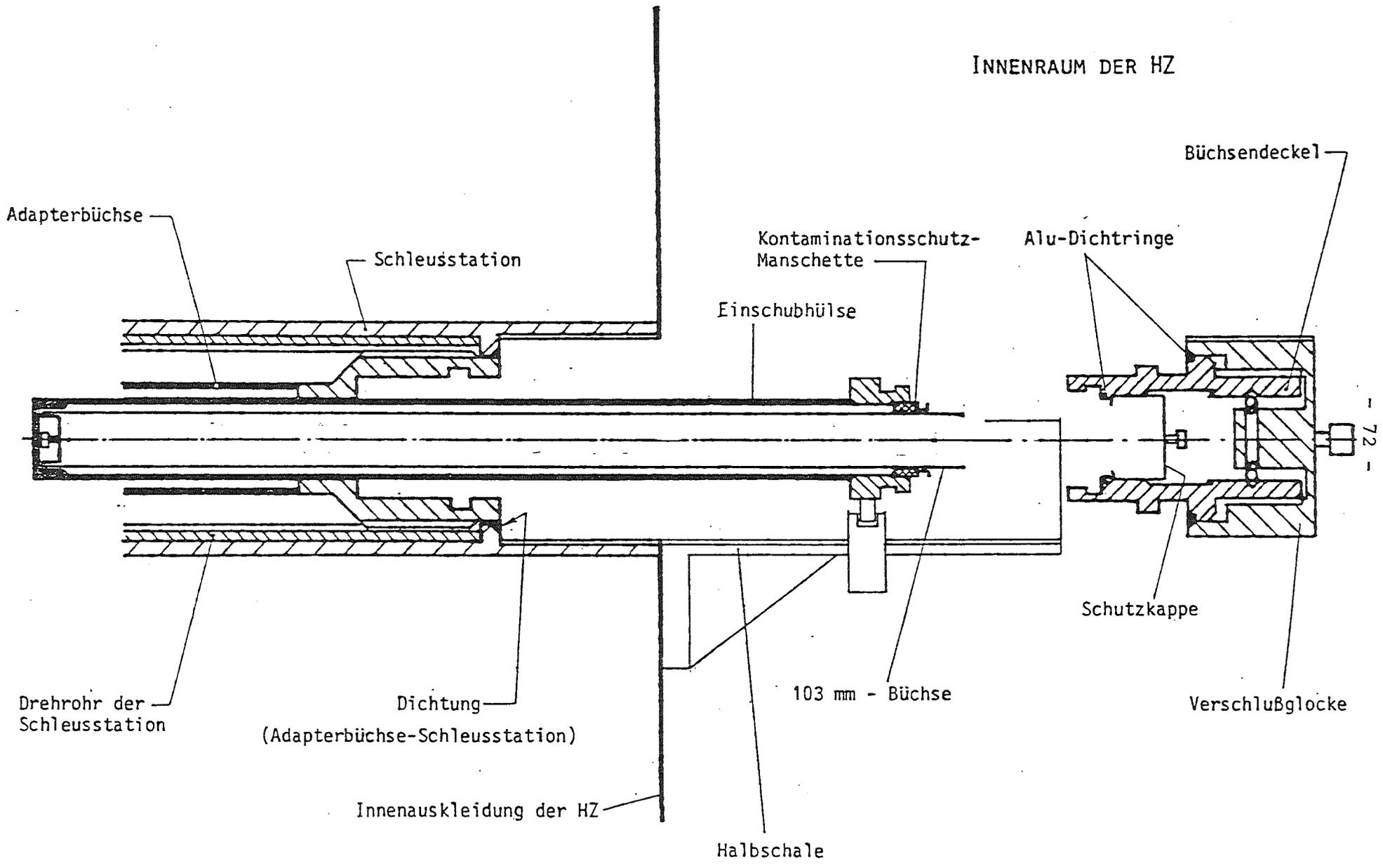
- 71 -

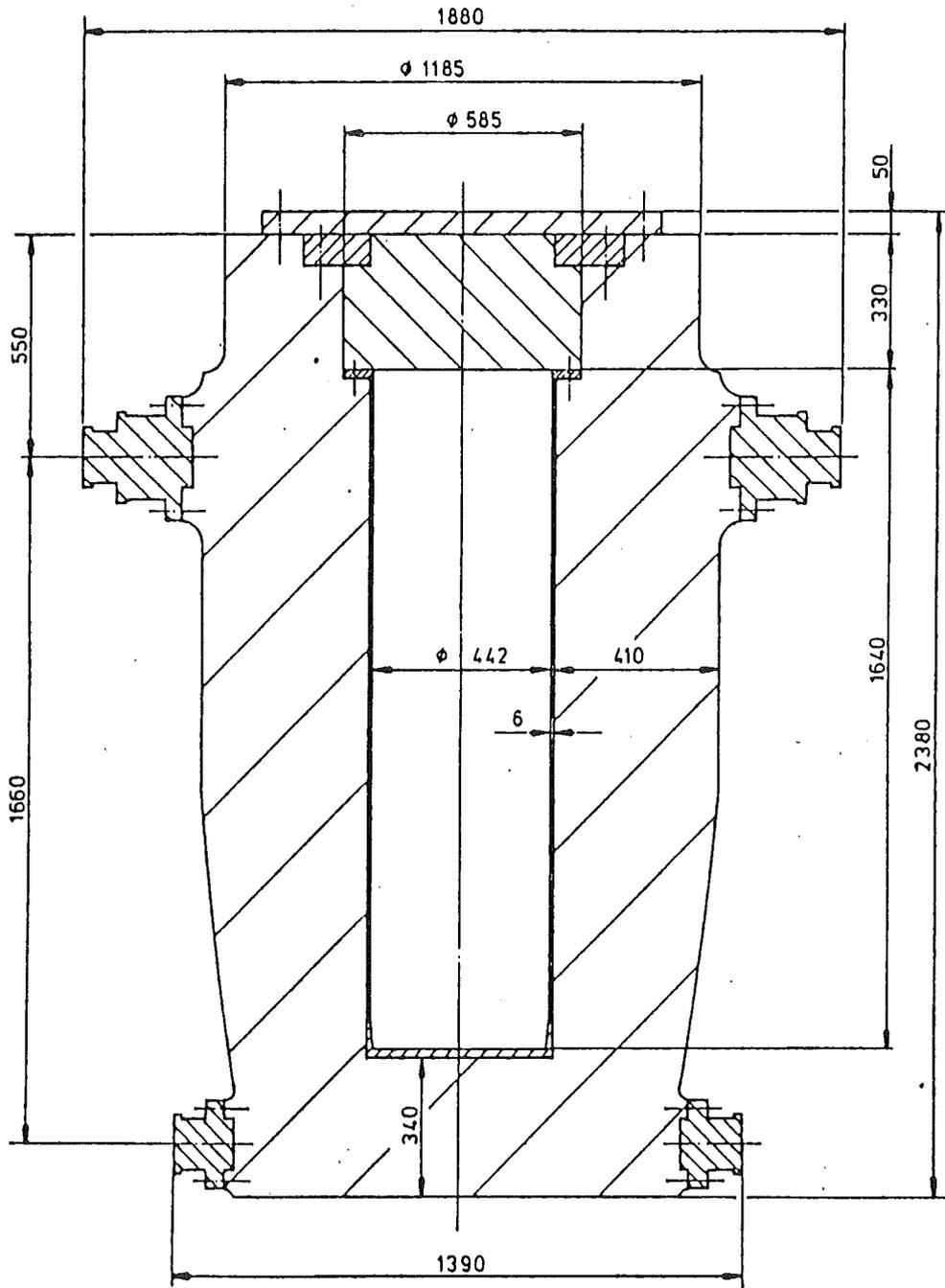
POIDS : 11 Kg (vide)

NOTA: toutes les soudures seront étanches
P = 1 BAR EXT.
(exécution à l'initiative du constructeur)

INDICE	DATE	OBJET DE LA MODIFICATION	MODIF. PAR	VSAS
MATIERE	Z 2 CN 18.10.	USINAGE	V partout (V)	
TRAITEMENT	Decoqe passive	PROTECTION		
CONTENEUR. POUR AIGUILLES PHENIX				VSAS
CEN - CADARACHE				
<small>CE PLAN EST LA PROPRIÉTÉ DE C. E. A. DE REPRODUCTION ET DE COMMUNICATION SANS AUTRES DROITS RESERVÉS LOI DU 11 MARS 1957</small>				
ECHELLE	1/1	SOPEMEC	500 00 05	PL
DATE				INDICE

Bild 6: Adapter-Büchse für 103mm - Büchse





Gewicht: ca. 18400 Kg

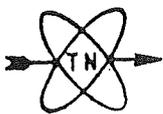


Bild 7:
Transportbehälter für
103 mm-Büchsen

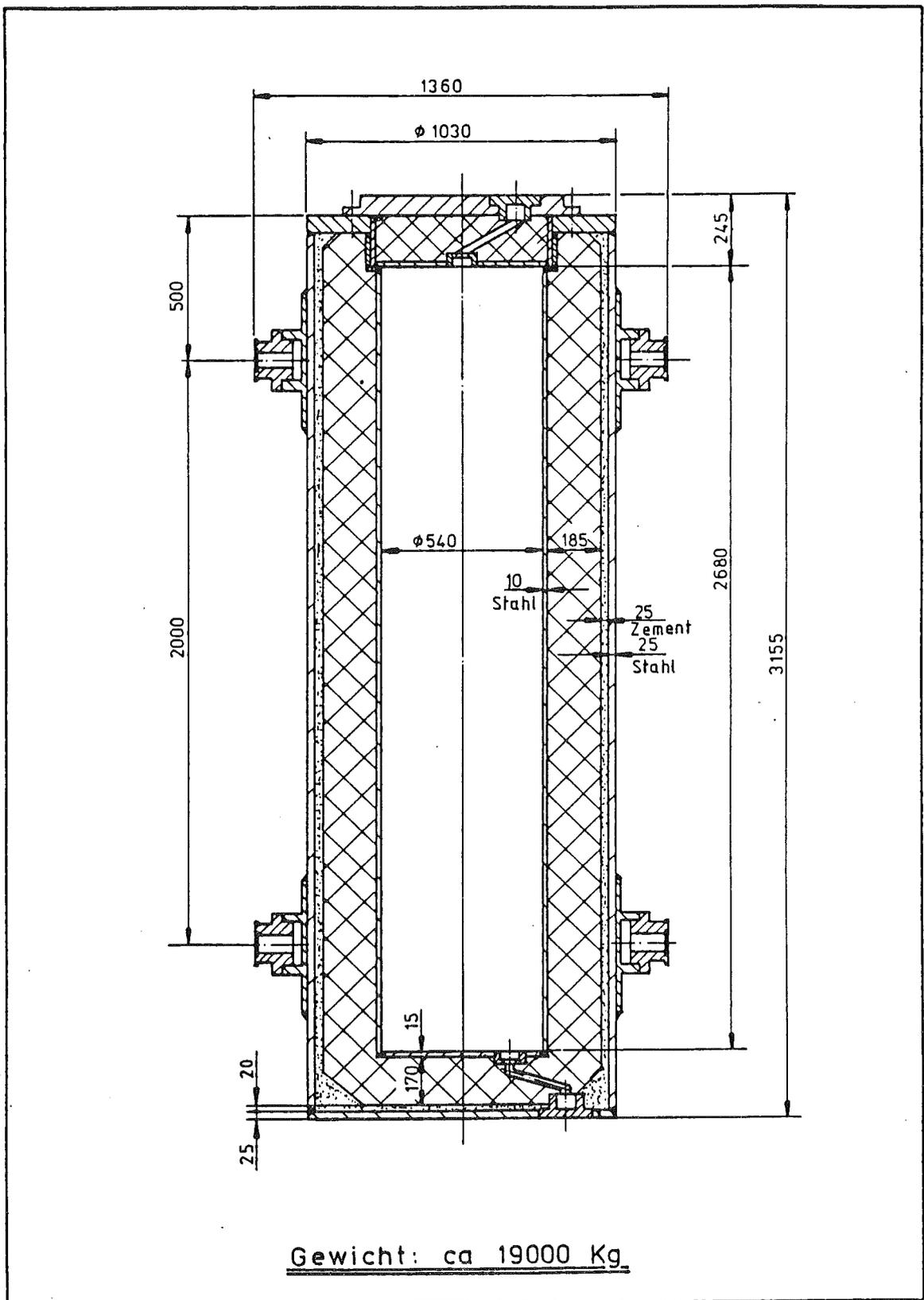


Bild 8 :
Mehrzweck — Bleibehälter

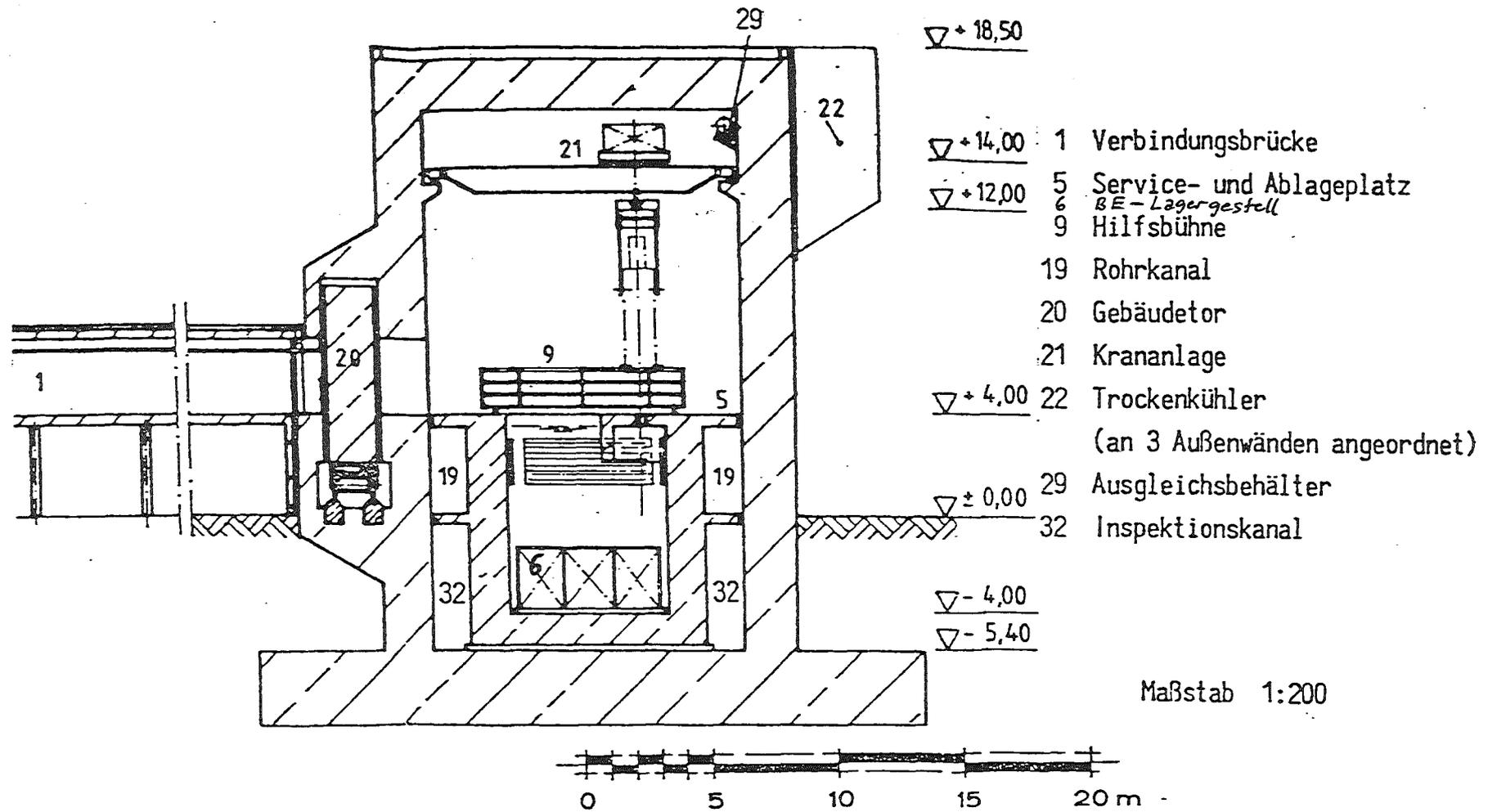
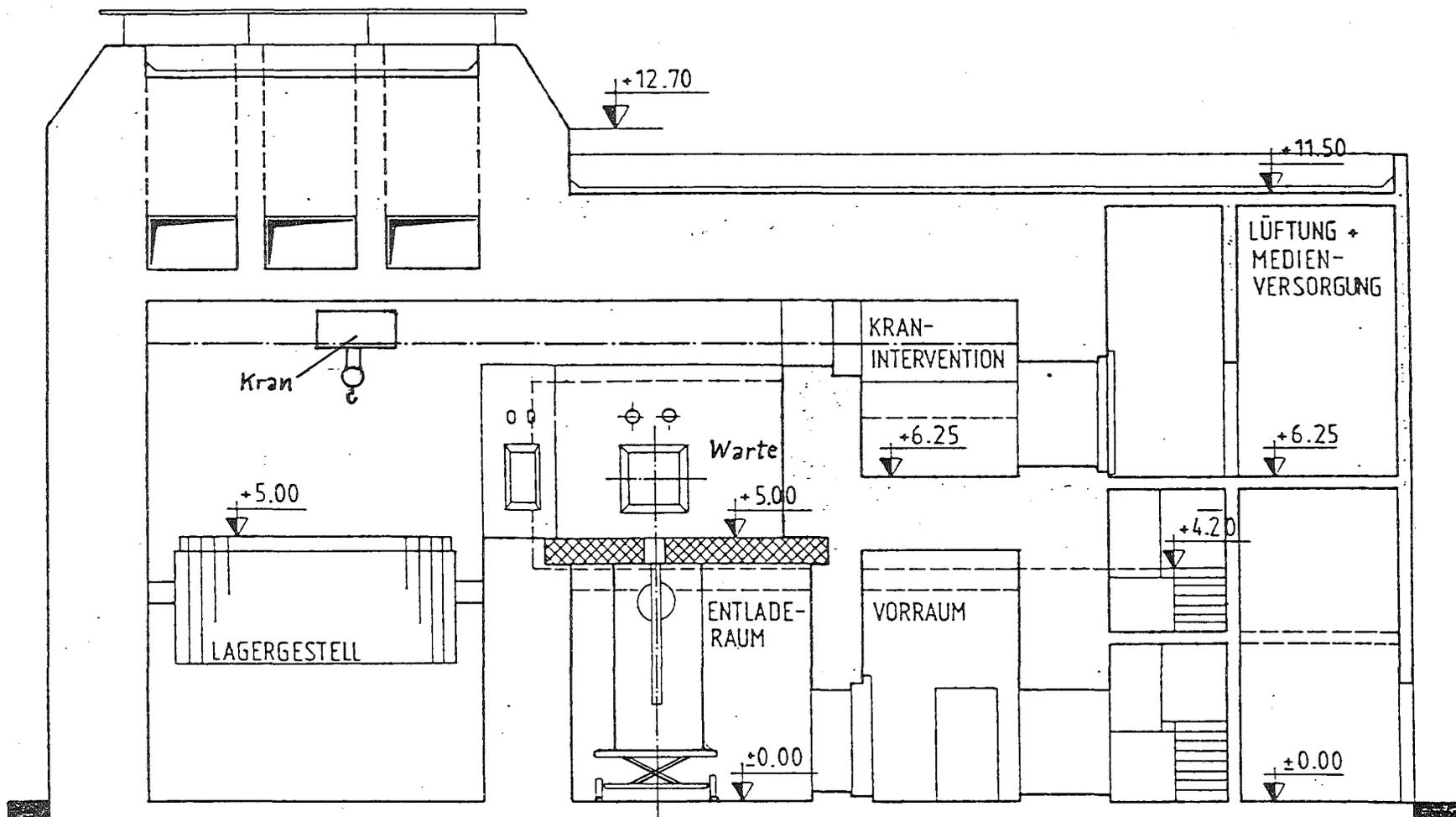


Bild 9: Naßlager, Querschnitt



M 1:100

Bild 10: Trockenlager, Längsschnitt



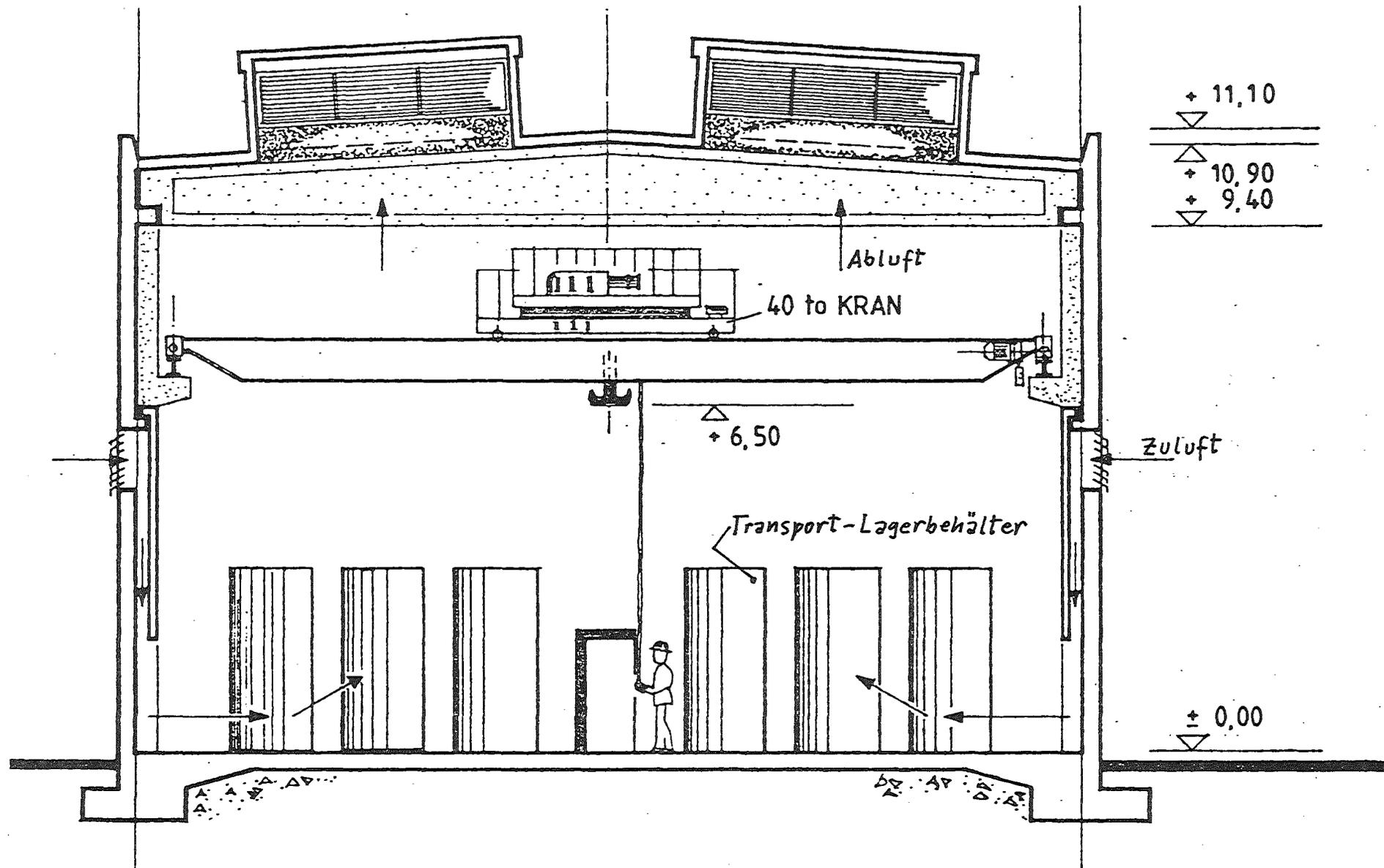
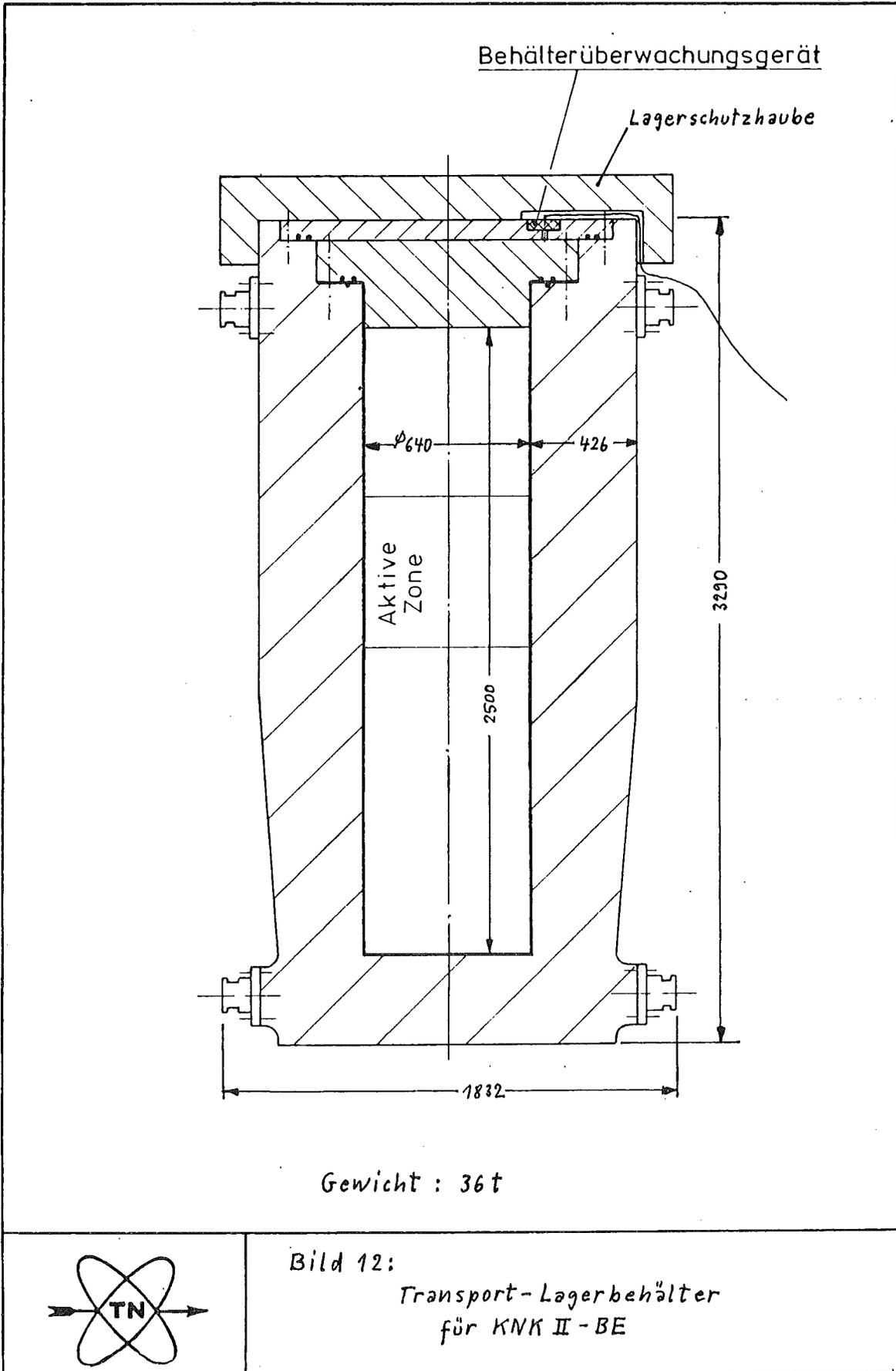


Bild 11: Behälterlager, Querschnitt





BRENNELEMENTSTRUKTUR UND -ZERLEGUNG

G. Bestenreiner

Interatom, Bensberg

Brennelementstruktur und Zerlegung

Nachdem im vorangegangenen Beitrag mehr die auslegungstechnischen Einflüsse und Randbedingungen auf die Brennelementkonstruktion d. h. die Brennstäbe und die diese tragende Struktur aufgezeigt wurden, werden in diesem Beitrag verstärkt die konstruktiven Einflüsse behandelt, die sich aus den Anforderungen Reparierbarkeit, Zerlegbarkeit und Abfallbehandlung ableiten. Damit ist dann auch bereits der Übergang zu den Arbeiten im mechanischen Head-end der Wiederaufarbeitungsanlage geschaffen, die in der darauffolgenden Arbeit geschildert werden.

Die Strukturbauteile (Kopf, Hüllkasten, Stababstandshalter, Fuß) sind genau genommen nur Hilfsmittel, die neben anderen Maßnahmen eine hohe Leistungsfreisetzung aus den Brennstäben ermöglichen (Abb. 1). So bewirkt der Fuß den Übergang der Kühlmittelströmung von der Gitterplatte d. h. dem Hochdruckbereich und ihren Einsätzen zum Stab-bündel. Die im Fuß eingebauten Drosseleinrichtungen passen den Kühlmittelstrom der jeweiligen Leistung der Elemente, entsprechend ihrer Position im Kernverband an. Die Abstandshalter verhindern eine zu starke Annäherung der Stäbe untereinander, der Hüllkasten schützt das ganze Brennstab-bündel vor äußeren Einflüssen, führt den Kühlmittelstrom, sorgt mit seinen Stützplustern für eine Abstützung der Kernelemente untereinander und stellt so den Aufbau des gesamten Kernverbands sicher.

Der Kopf dient als Griff für die Handhabungswerkzeuge und beinhaltet zugleich Bauteile, die die Austrittstemperatur des Kühlmittels vergleichmäßigen und je nach Reaktorbauweise darüberliegende Tankstrukturen vor zu hoher Neutronenstrahlung schützen.

So wichtig alle diese Bauteile und ihre Funktionen für einen ordnungsgemäßen Betrieb des Reaktors auch sind und so viel auslegungstechnischer Aufwand zu ihrer Gestaltung auch erforderlich ist, sobald die Kernelemente aus dem Reaktor entladen werden und zur Wiederaufarbeitungsanlage kommen, sind diese Strukturen erst noch Transportbehälter für die Stäbe und dann hinderlich.

Hinderlich deshalb, weil durch sie das Freilegen der Brennstäbe erschwert wird und weil sie, durch den Reaktoreinsatz aktiviert, selbst strahlen und so eine einfache Beseitigung dieses Abfalls erschwert wird. Hier wird spätestens auch ersichtlich, daß bis auf den Brenn- und Brutstoff, der ja noch ein erhebliches Energiereservoir beinhaltet, die Brenn- und Brutelemente "Wegwerfartikel" sind.

Aus diesen Gesichtspunkten und aus der zusätzlichen Forderung der Reparierbarkeit, diese wird immer stärker mit zunehmender Stabanzahl pro Element, leiten sich nun zusätzlich zu den eingangs kurz erwähnten auslegungstechnischen und sicherheitstechnischen Vorgaben weitere Randbedingungen für die konstruktive Gestaltung der Brenn- und Brutelemente ab.

Als wesentliche Punkte sind zu nennen:

- Das Schlagwort "Wegwerfartikel" zielt auf eine fertigungstechnisch möglichst einfache und damit kostengünstige Konstruktion der Bauteile.
- Der Zeitaufwand für die Freilegung (Vereinzeln) der Brenn- bzw. Brutstäbe darf im Gesamtablauf der Wiederaufarbeitung nicht bestimmend werden.

- Der mögliche Austausch defekter Brennstäbe durch neue oder durch Blindstäbe ermöglicht eine bessere Ausnutzung des Brennstoffes - Reparierbarkeit.
- Die Masse und das Volumen der Struktur müssen auf das zur Sicherstellung eines ordnungsgemäßen Reaktorbetriebes notwendigen Maßes verringert werden.
- Die eingesetzten Werkstoffe sind so auszuwählen, daß deren Aktivierung möglichst gering gehalten wird. Dies gilt ganz besonders für die Problemstellen, d. h. z. B. die Kontaktstellen zu den Nachbarelementen, zu den Gitterplatteneinsätzen usw.

Alle diese Punkte dienen der dringend erforderlichen Senkung der Brennstoffzykluskosten des Schnellen Brütters und sind daher für die kommerzielle Einführung dieser Reaktorbaulinie mit von entscheidender Bedeutung.

Welche Maßnahmen wurden nun bisher von uns, d. h. von der Seite der Ausleger, bei der konstruktiven Gestaltung ergriffen, um diesen Zielen näherzukommen?

Am Beispiel der Brennelemente der Reaktoren KNK-II, Erstbeladung, erste und zweite Nachladung, der Erstkernelemente des SNR-300 sowie der sogenannten MK-II Nachladeelemente und der Ansätze für die SNR-2-Brennelemente werden im folgenden Entwicklungsschritte schlaglichtartig aufgezeigt.

Obwohl der grundsätzliche Element- und Bündelaufbau bei den Erstkernelementen der KNK-II und des SNR-300 gleich sind, weisen die SNR-300 Elemente im Detail schon Vereinfachungen gegenüber den KNK-II Elementen auf. Zum Beispiel sind bei der Stabkonstruktion das vereinfachte Stützrohr (Abb. 2), das bei KNK-II/1 noch aus 3 Einzelteilen (Scheibe, Rohr, Scheibe) bestand und beim SNR-300 nur noch

aus einem an den Enden eingerollten Rohr besteht zu nennen. Die unteren Endkappen der KNK-II Stäbe waren als Gewindezapfen mit Paßsitz ausgebildet und durch die Stabhalteplatte gesteckt (Abb. 3). Eine Mutter pro Stab von unten gegen die Stabhalteplatte geschraubt - gesichert durch einen Schweißpunkt - verhinderte Stabbewegungen. Bei den SNR-300 Brennstäben dagegen ist das untere Ende der Endkappe außen nur zylindrisch und innen mit einem Sackloch versehen. Dieser Teil der Endkappe ragt durch die Stabhalteplatte und wird verquetscht, so daß kein zusätzliches Bauteil mit einer weiteren Sicherung notwendig ist. In beiden Fällen ist die Stabhalteplatte jedoch ein durch Feinguß und Bohren oder durch Funkenerosion hergestelltes Bauteil mit Durchbrüchen für die Stabenden und für das Kühlmittel.

Ein Austausch defekter Stäbe ist bei beiden Konstruktionen noch nicht möglich.

Beide Bündel sind sogenannte Skelettkonstruktionen, bei denen die Abstandshalter an drei bzw. sechs Strukturstäben befestigt sind. Diese Strukturstäbe sind wie die Brennstäbe in der Stabhalteplatte befestigt. Jeder Abstandshalter wird durch sechs bzw. zwölf sogenannte Stops in seiner axialen Position gehalten. Diese Stops sind auf die Strukturstäbe aufgefädelt und durch Widerstandsschweißpunkte mit diesen verbunden. Zusätzlich zwischen den Stops aufgefädelte Verdrängerrohre sollten bei den KNK-II-Elementen die fluid- und thermodynamischen Verhältnisse (kalte Strähnen) verbessern.

Diese Konstruktion bedeutet für die Zerlegung eine gewisse Erschwernis, da das Skelett nach Abtrennen des Fußes frei beweglich ist. Beim Ziehen mehrerer oder aller Stäbe in einem Arbeitsschritt muß das Skelett gegenüber dem Hüllkasten blockiert werden. Bei den KNK-II Elementen wird

dies durch zusätzliche Nasen an der Zerlegevorrichtung ermöglicht, bei den SNR-300-Elementen ist das obere Ende der Strukturstäbe mit je einem Bund versehen in den einfache Vorrichtung eingreift und sich zugleich am Hüllkasten abstützt.

Während bei den KNK-II/1-Brennelementen das Ziehen aller Brennstäbe noch nicht vorgesehen ist, ermöglicht die Konstruktion der SNR-300-Elemente dieses zeitsparende Verfahren bereits.

Neben der oben erwähnten Vorrichtung zum Halten des Skeletts sind in der Stabhalteplatte radiale Bohrungen vorgesehen, die dem Greifer der Ziehvorrichtung die Möglichkeit zum Einhaken geben. Die Stabhalteplatte dient als Kraftübertragungsglied der durch die Reibkräfte an den Abstandshalternoppen auf die Stäbe wirkenden Zugkräfte.

Nachdem das ganze Stabbündel aus der Struktur gezogen wurde, löst ein Sägeschnitt durch die Stabhalteplatte auch diese Verbindung. Die Stäbe liegen dann einzeln zur weiteren Verarbeitung vor.

Mit der erfolgreichen Zerlegung von bisher 3 Testzonen- und einem Treiberzonenelement in den Heißen Zellen des KfK wurde bestätigt, daß das von INTERATOM in Zusammenarbeit mit den Abteilungen KTB-HZ und IT des KfK entwickelte Verfahren und die eingesetzten Vorrichtungen eine problemlose Zerlegung von Elementen mit Gitterabstandshaltern ermöglichen. Dies dient u. a. auch als wesentliche Voraussetzung für die Entwicklung größerer Zerlegeeinrichtungen für die SNR-300 und SNR-2-Kernelemente.

In einer detaillierten Studie hat die Kraftwerk Union auch gezeigt, daß sich diese Zerlegungsart mit den aus den Leichtwasserreaktoren bekannten Reparaturkonzepten auch für Schnellbrüter-Brennelemente anwenden läßt. Dieses Verfahren ist prinzipiell einsetzbar, wenn z. B. aus Gründen der Kapazitätserweiterung bzw. Ausnützung geeigneter vorhandener Anlagen (Wasserbecken mit angeschlossener Infrastruktur) eine weitere Zerlegestation gewünscht wird. Die Abb. 4 zeigt den prinzipiellen Aufbau einer solchen Anlage.

Mit der Einführung des sogenannten MK-II-Brennelement-Konzepts konnte nun nicht nur die Vielfalt der in der Konstruktion verwendeten Bauteile deutlich verringert werden, sondern auch die Zerlegung dieser Elemente wurde vereinfacht und es wurde z. B. mit den Elementen der ersten und zweiten Nachladung der KNK-II ein entscheidender Schritt zur Reparaturfähigkeit getan. In zwei Brennelementen der Testzone ist darüber hinaus noch vorgesehen, die Brennstäbe mit den vom KfK-JMF-III entwickelten Leckdetektionseinrichtungen (Faltenbalg mit Ferritkern) auszustatten.

Durch die Befestigung der Abstandshalter mittels Strömungsleitschürzen direkt am Hüllkasten (Abb. 5) wurden die thermo- und fluiddynamischen Verhältnisse an den Bündelrändern verbessert, die bisher durch die Strukturstäbe besetzten Positionen werden durch Brennstäbe aufgefüllt. Die oben geschilderten Maßnahmen zur Fixierung des Skelettes bei der Zerlegung des Elementes sind nicht mehr erforderlich. Dadurch reduzierte sich die Anzahl der Zerlegeschritte und damit auch die Zerlegezeit.

Eine weitere Reduzierung der Bauteile und damit auch der Fertigungskosten läßt sich bei den SNR-300-Brenn- und Brutelementen noch erreichen, indem man z. B. auf die Austauschbarkeit der Drosselkörper im Fuß verzichtet.

Weitere bei INTERATOM im Rahmen des F+E-Programmes derzeit laufende Versuche zielen darauf hin, auch noch die Drosselkörper durch geschickte Wahl der Kühlmittel-eintrittsöffnungen im Brennelementfuß entfallen zu lassen. Die Abbildung 6 zeigt die Entwicklungsrichtung auf.

Eine vergleichbare Maßnahme bei den KNK-II-Testzonenelementen könnte dazu führen, daß nicht bei jedem Brennelementwechsel auch der zugehörige Gitterplatteneinsatz ausgetauscht werden muß. Ein gewisser Teil des Druckabbaues kann auch hier durch die Wahl der Eintrittsöffnungen im Brennelementfuß erreicht werden. Wie aber auch bei den SNR-300-Elementen sind solche Maßnahmen nur durch Versuche in Wasser und z. T. auch in Natrium und nicht allein durch theoretische Überlegungen festzulegen und abzusichern.

Die Art der Stabbefestigung wurde beim MK-II-Elementtyp dahingehend vereinfacht, daß als Halteplatte ein leicht modifizierter Abstandshalter, der aus einem Zwischenschritt der Normalfertigung entnommen wird und als Gegenplatte eine einfache gebohrte Platte verwendet wird. Die Halteplatte wird gegen Bewegung nach oben durch im Hüllkasten befestigte Bleche gesichert. Der am Hüllkasten befestigte Fuß hält die Gegenplatte und stützt damit auch die Brennstäbe. Es besteht keine feste Verbindung der Stäbe bzw. der Stabhalterung mit dem Fuß. Mit dieser Konstruktion ist zugleich eine wesentliche Voraussetzung für ein Austausch defekter Stäbe gegeben. Die Abbildung 7 zeigt den prinzipiellen Aufbau der Stabhalterung.

Für das Freilegen der Brennstäbe für die Wiederaufarbeitung muß bei dieser Konstruktion nur noch der Fuß vom Hüllkasten entfernt werden. Der Greifer der Zerlegevorrichtung kann dann in die an der Halteplatte befestigten Zuglaschen einhaken und das ganze Stabbündel aus dem Hüllkasten ziehen. Die Abstandshalter verbleiben im Hüllkasten. Ein weiter Schnitt durch die Endkappen löst dann die Stabbefestigung.

Ein weiterer Ansatzpunkt für die Kosteneinsparung ist die Verringerung der Anzahl der Abstandshalter selbst. Sind bei den MK-Ia-Brennelementen noch 14 Stück eingesetzt, so befindet sich bei INTERATOM derzeit ein sog. MK-II-Referenzelement mit nur noch 10 Abstandshaltern im Natriumtest. Aber auch hier gilt verstärkt, daß solche Maßnahmen in Sonderelementen im Reaktor erprobt werden müssen, bevor an den generellen Einsatz gedacht werden kann.

Die hier beispielhaft geschilderten Maßnahmen zur Vereinfachung der Kernelemente und damit zur Senkung der Fertigungskosten und der Einsatz der mit solchen Merkmalen ausgestatteten Brennelementen in den Nachladungen der Reaktoren KNK-II und SNR-300 als Standardelemente oder zu Testzwecken dient als Grundlage für die Konzipierung der Brennelemente des SNR-2. Für diesen wesentlichen größeren Brennelementtyp ist es unbedingt erforderlich die betriebs- und kostenmäßigen Auswirkungen dieser Maßnahmen soweit wie möglich vorhersagen zu können.

Die Steigerung der Elementgröße und die deutliche Erhöhung des Abbrandes bedeuten jedoch für die Zerlegung ebenfalls höhere Anforderungen. Beispielhaft seien genannt:

- die Vergrößerung der Schlüsselweite des Hüllkastens von ca. 108 mm beim SNR-300, Mk-II auf ca. 179 mm beim SNR-2,
- die Erhöhung der Anzahl Brennstäbe von 127 auf 271 pro Element,
- die Verlängerung des Elementes von 3700 mm auf ca. 4850 mm,
- die Vergrößerung des Stabdurchmessers von 7,6 mm auf ca. 8,5 mm,
- die Erhöhung der Standzeit der Elemente (und damit des Abbrandes) auf ca. 1200 VLT, dies bedeutet eine Zunahme des Volumenschwellens der Bauteile über das bisher bekannte Maß, wenn nicht noch erheblich schwellresistentere Werkstoffe gefunden werden.

Diese Punkte erfordern für die Zerlegung dieser Elemente Maßnahmen, die bereits in die Konstruktion einfließen müssen. So erhöht sich z. B. unter Annahme der bisherigen absoluten Schwellwerte die zum Ziehen des Bündels aus der Struktur erforderliche Zugkraft allein aufgrund der Erhöhung der Stabanzahl um ungefähr den Faktor 2. Hinzu kommt noch ein Anteil der aus dem größeren Widerstandsmoment (ca. Faktor 1,4) der Hüllrohre herrührt.

Mögliche Maßnahmen gegen diese Zugkrafterhöhung und damit größere Belastung der Strukturbauteile Abstandshalter und Strömungsleitschürzen sind:

- Vergrößerung der Zellenkreisdurchmesser der unterhalb des aktiven Bereichs liegenden Abstandshalter,
- Aufteilen des Bündels in ein zentrales und ein ringförmiges Teilbündel, die nacheinander gezogen werden oder
- der Einsatz sogenannter "weicher" Abstandshalter, die aufgrund ihrer Formgebung den zu ziehenden Stäben weniger Widerstand entgegensetzen. Das Prinzip dieses Abstandshaltertyps zeigt die Abbildung 8.

Andererseits verbessern sich die Verhältnisse z. B. im Hinblick auf die Zerlegezeiten. Bei einem nur geringfügig größeren Zeitaufwand steigt der Schwermetalldurchsatz pro Element ungefähr auf das Dreifache (SNR-300 Mk-Ia zu SNR-2-Brennelement).

Bei der Durchsprache der konstruktiven Entwicklung dürfen auch die eingesetzten Werkstoffe nicht unerwähnt bleiben.

Ich beschränke mich hier auf die früher überwiegend mit Stellite gepanzerten Übergangsstellen zu den Gitterplatten-einsätzen und zu den Nachbarelementen.

Wurden in den Kernelementen der KNK-II/1 und KNK-II/2 noch in nennenswertem Umfang stelliteierte Kontaktflächen eingesetzt (Co-Anteil ca. 60 %), so sind bei den Erstkernelementen des SNR-300 nur noch die Stützplaster am Hüllkasten mit einer dünnen Stelliteschicht gepanzert. Alle anderen Kontaktstellen bestehen aus dem Werkstoff Inconel. Bei den KNK-II/3-Brennelementen, deren Konstruktion vor kurzem abgeschlossen wurde, sind bereits alle ehemals stelliteierten Kontaktstellen durch Bauteile aus Inconel ersetzt worden.

Es ist unser Ziel diese Richtung auch bei der Konstruktion der SNR-2-Kernelemente zu realisieren. Die Betriebserfahrungen vor allem aus der KNK und später aus dem SNR-300 werden uns dabei sehr behilflich sein.

Abschließend noch einige Erläuterungen zu unseren weiteren Arbeiten zur Zerlegung der Kernelemente.

Nachdem wir mit unseren bisherigen Versuchen zur Zerlegung von Brennelementen mit Gitterabstandshaltern in der Größe von KNK-II und SNR-300-Brennelementen nachgewiesen haben, daß sich dieser Elementtyp schneller zerlegen läßt als Elemente mit Drahtwendelabstandshalterung, wenden wir uns jetzt den SNR-2-Elementen zu.

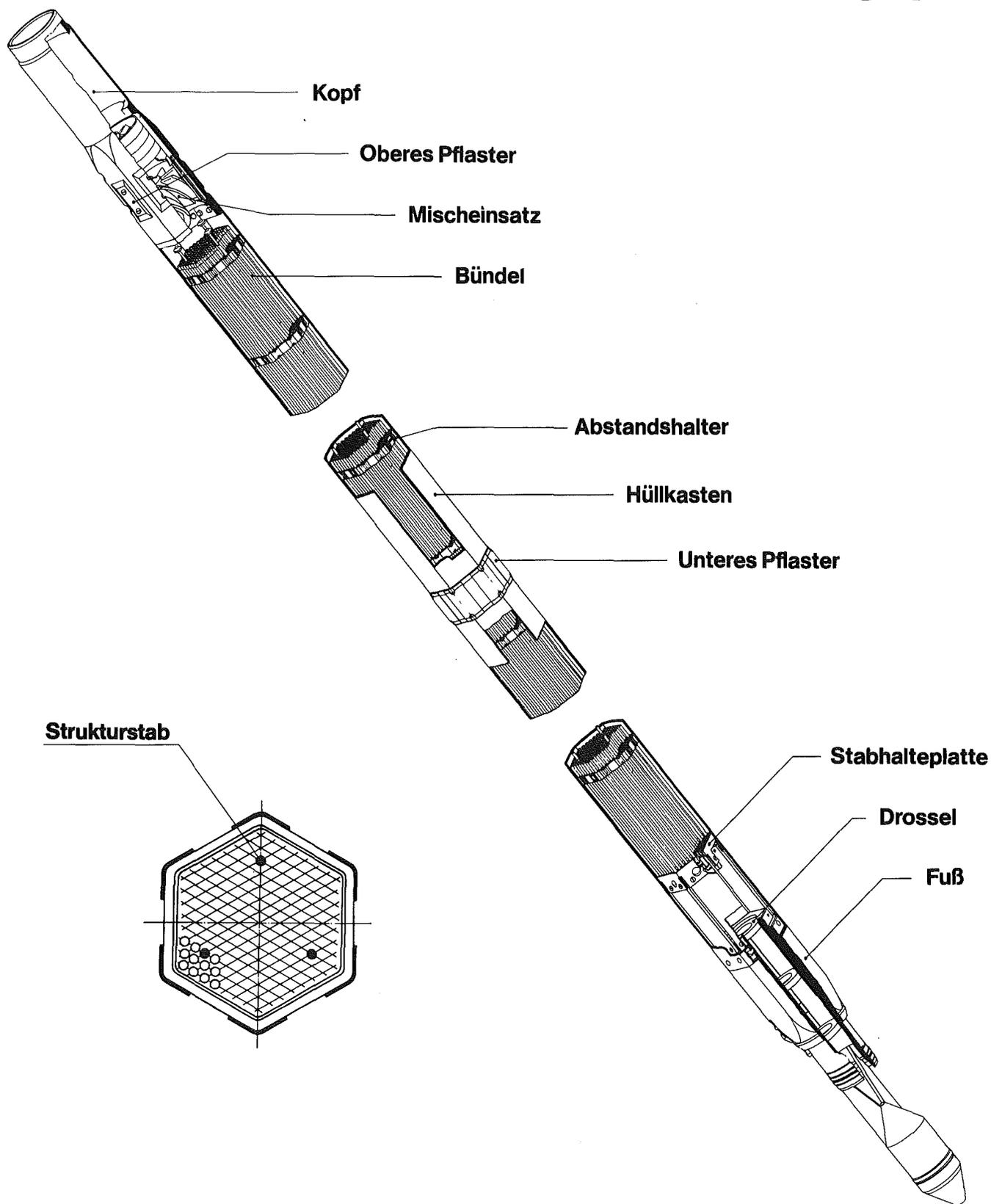
Mit einer fernbedienten Demonstrationszerlegeanlage (Abb. 9) wollen wir zum einen die Zerlegeschritte sowie die erforderlichen Werkzeuge und Vorrichtungen testen und zum anderen den gesamten Zerlegeablauf demonstrieren. Wir nutzen die dabei gewonnenen Erkenntnisse aber auch für die Konstruktion der SNR-2-Kernelemente.

Neben der altbekannten Bügelsäge werden wir die Einsatzmöglichkeiten eines CO₂-Hochleistungslasers prüfen. Sein Einsatz ist vor allem für Längsschnitte am Hüllkasten vorgesehen. Diese sind erforderlich für Bündel mit Drahtwendelabstandshalterung. Aber auch der Einsatz bei Umfangsschnitten am Hüllkasten stellt in bestimmten Fällen eine interessante Alternative zur Bügelsäge dar.

Der prinzipielle Zerlegeablauf selbst wird, wie er bisher erprobt wurde, beibehalten.

Ein Schnitt durch den Fuß löst diesen vom Hüllkasten und legt das untere Ende des Stabbündels frei. Dieses kann dann bei Gitterelementen aus der Struktur gezogen werden, während bei Elementen mit Drahtwendelung der Hüllkasten mindestens einmal längs aufgetrennt werden muß, bevor das Stabbündel gezogen werden kann.

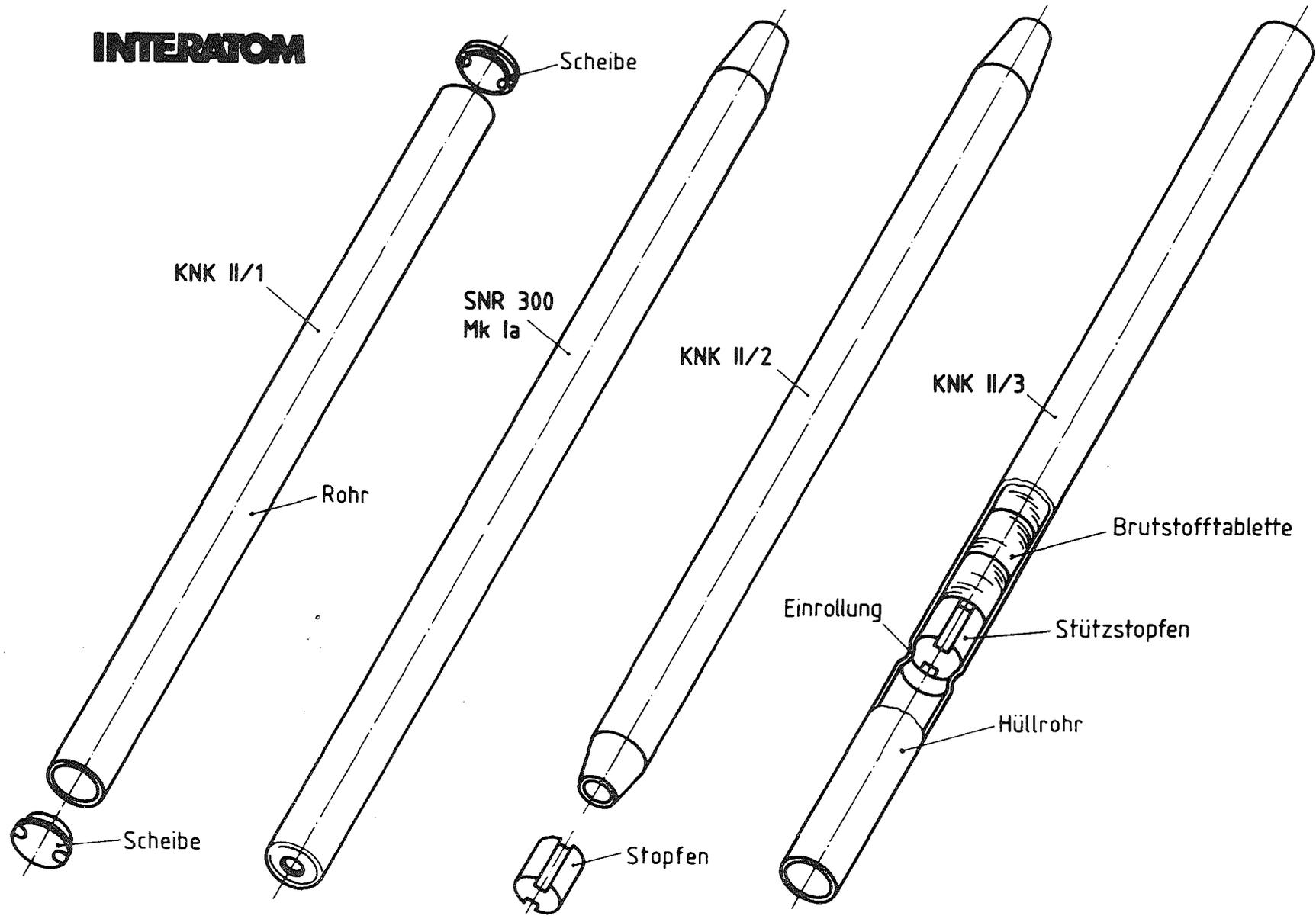
Es soll noch erwähnt werden, daß mit dieser Vorrichtung bzw. den zu testenden Werkzeugen nicht nur die Zerlegung der Elemente und die Zerkleinerung der Struktur unter Heißen-Zellen-Bedingungen erprobt werden soll, sondern auch z. B. die Entwicklung und Erprobung der fernbedienten Verpackung und Verschweißung des Abfalls in transportgerechte Gebinde erfolgen kann.



SNR 300 Mk Ia Brennelement

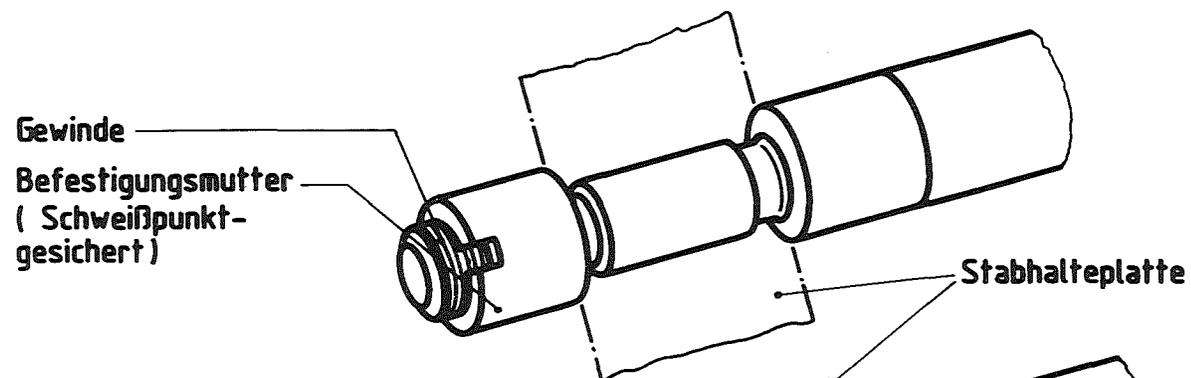
Abb. 1

INTERATOM

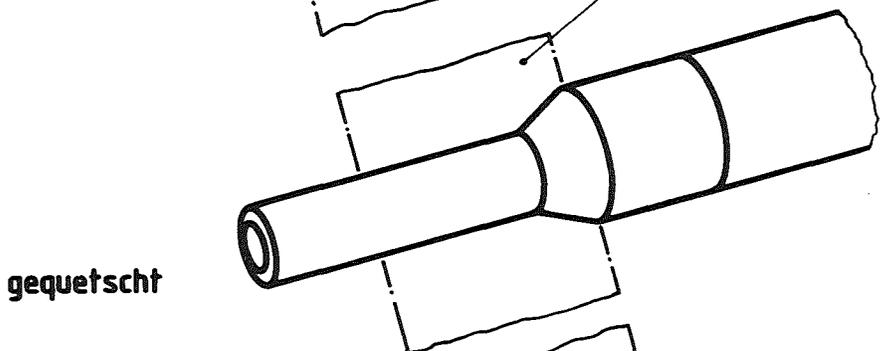


Entwicklung Stützrohr

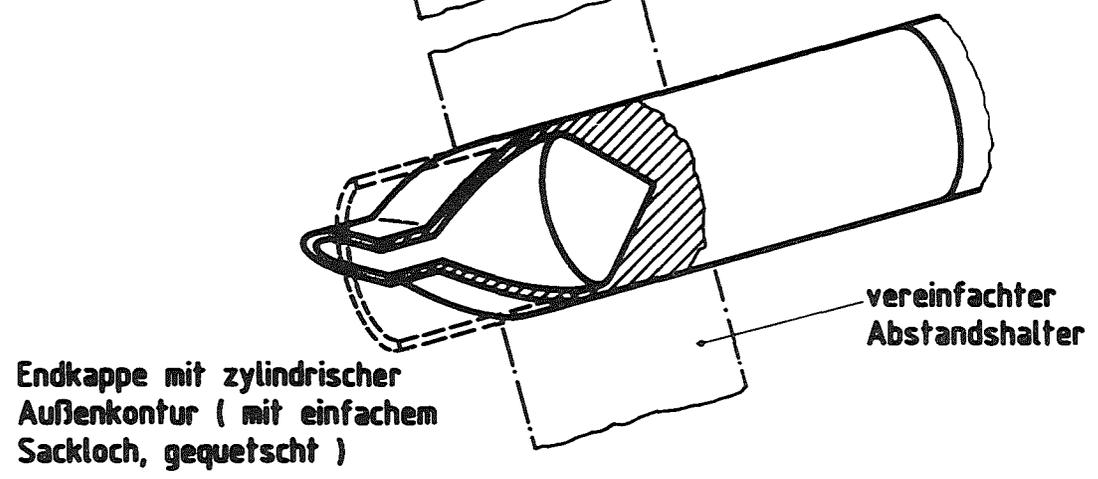
Abb. 2



KNK II/1



SNR 300 Mk Ia

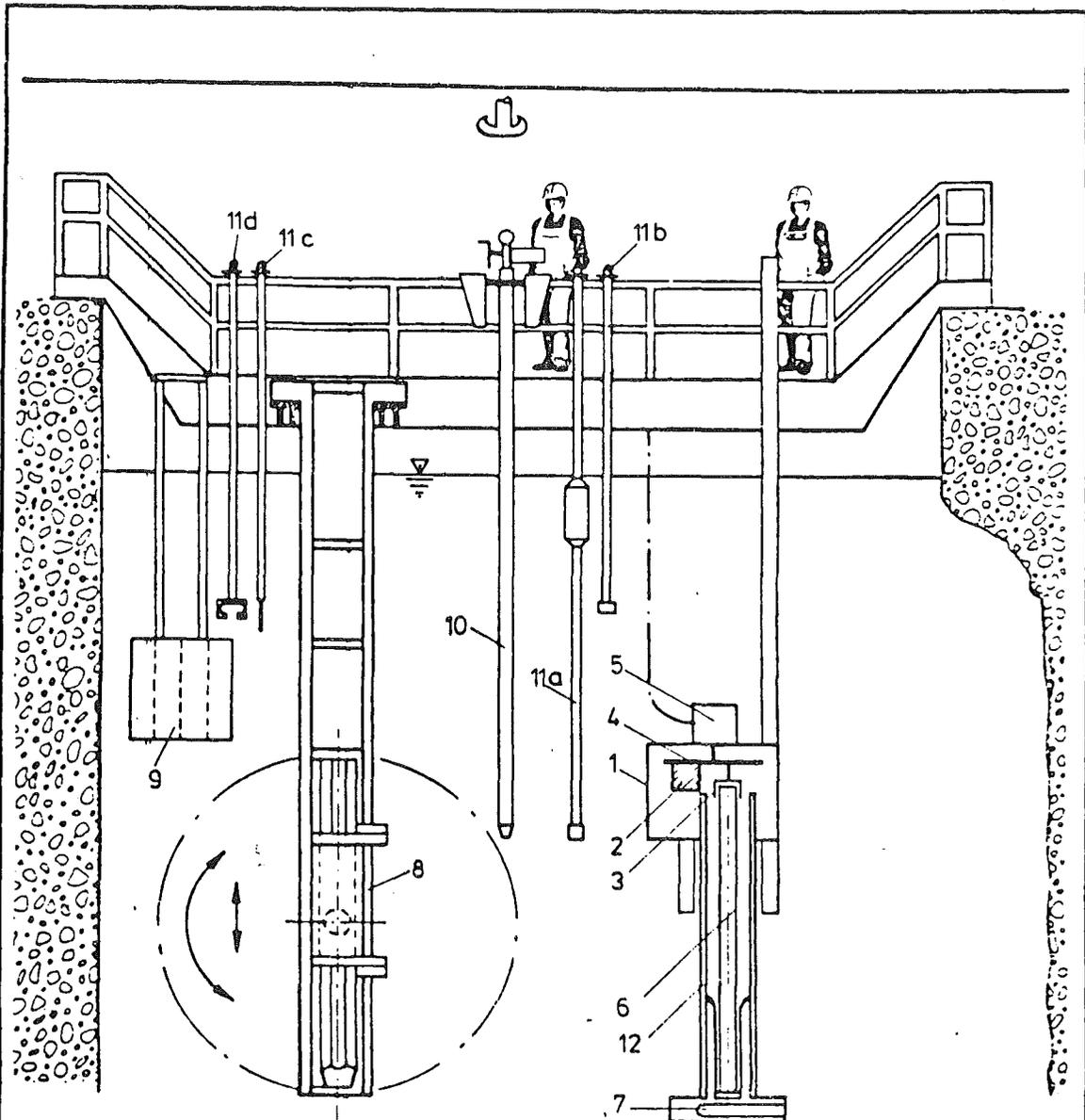


KNK II/3
Mk II
SNR 2 Entwicklung

ENTWICKLUNG STABBEFESTIGUNGEN

Abb. 3

Weitergabe ohne Verwendfälligkeit, dieser, Unterwasserzerlegung und Mittelung ohne Inhalt, nicht gestaltet, soweit nicht ausdrücklich zugestanden, Zuersthandlungen verpflichten zu Schadensersatz. Alle Rechte für den Fall der Patenterteilung oder G.M.F. Inanspruchnahme vorbehalten.



- | | |
|--------------------------------|------------------------------|
| 1 Haube | 7 Heizung |
| 2 Schweißkopf | 8 BE-Schwenkvorrichtung |
| 3 Trockenvorrichtung | 9 Behälter für BE-Endstücke |
| 4 Drehteller | 10 Brennstab-Ziehvorrichtung |
| 5 Anschlußkasten mit Kabelbaum | 11 a-d Stangenwerkzeuge |
| 6 BS-Büchse | 12 Doppelwandiger Schacht |

A 4 10 000 6 76 2076

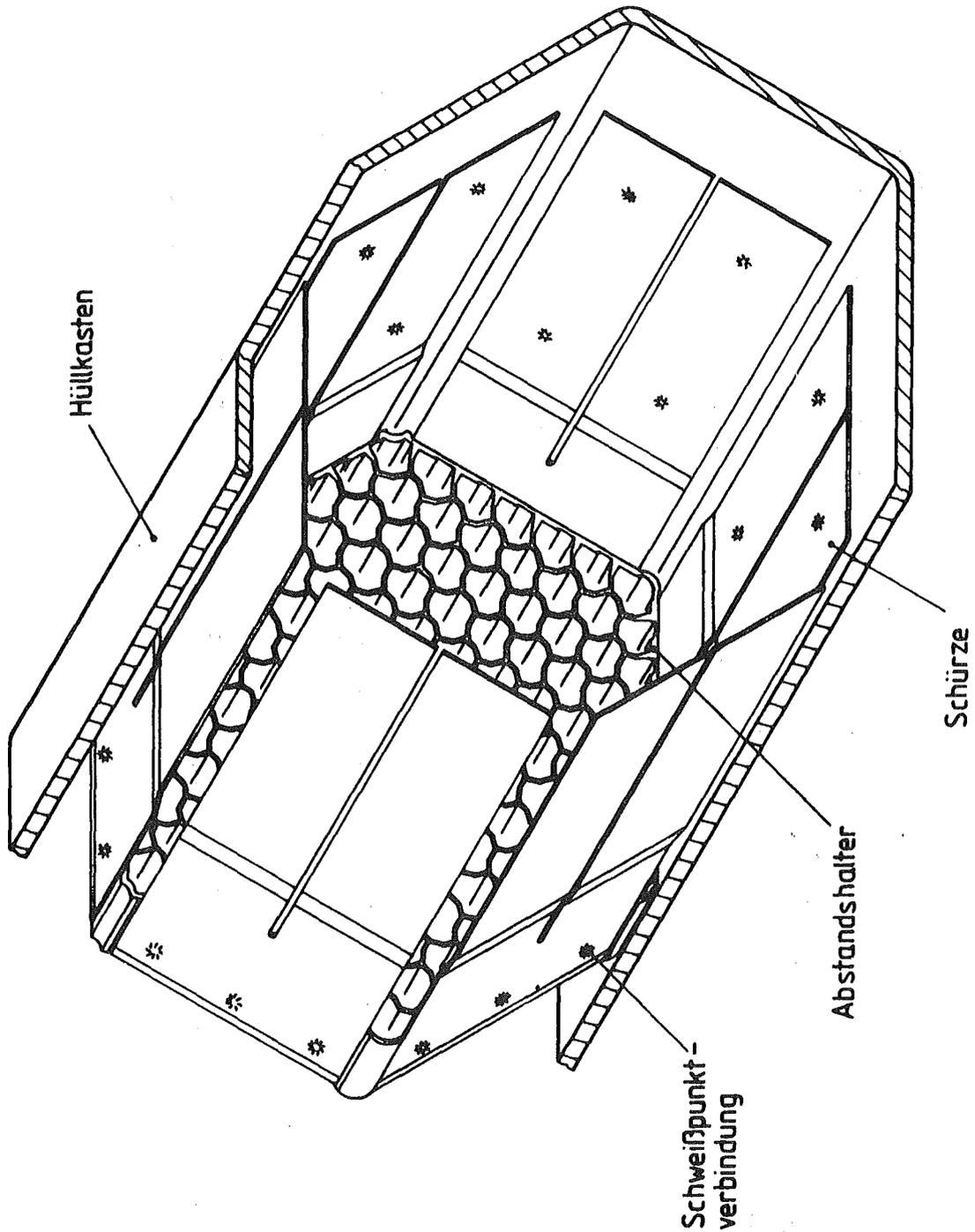
Abteilung	B 212
Name	Kt./Dö.
Datum	08.82

Unterwasserzerlegung von KNK-II-BE

Abb. 4



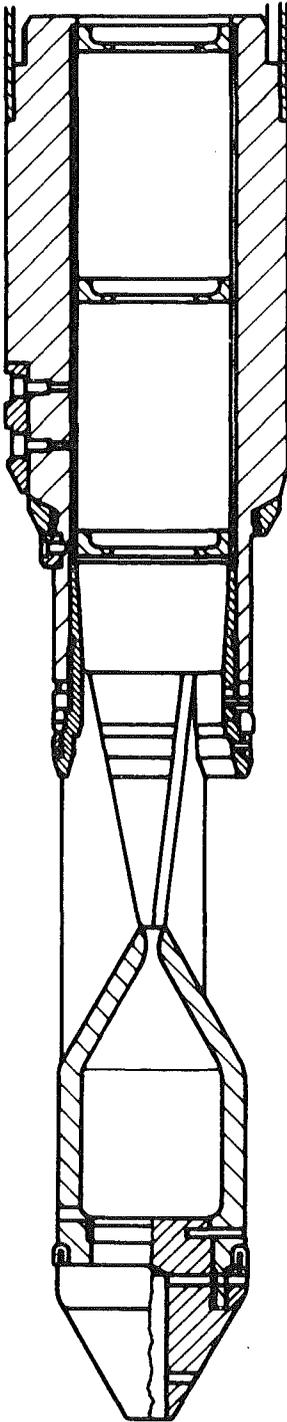
Kraftwerk Union
Aktiengesellschaft



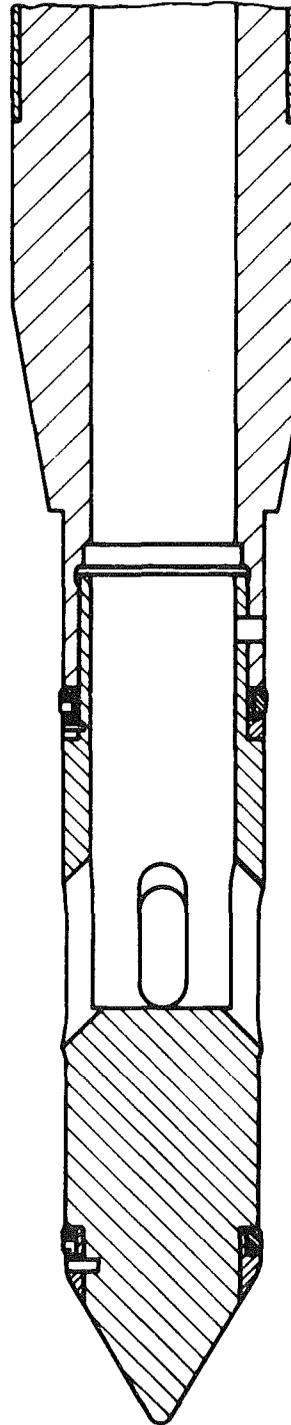
Hüllkasten mit Abstandshalter und Schürzen

Abb. 5

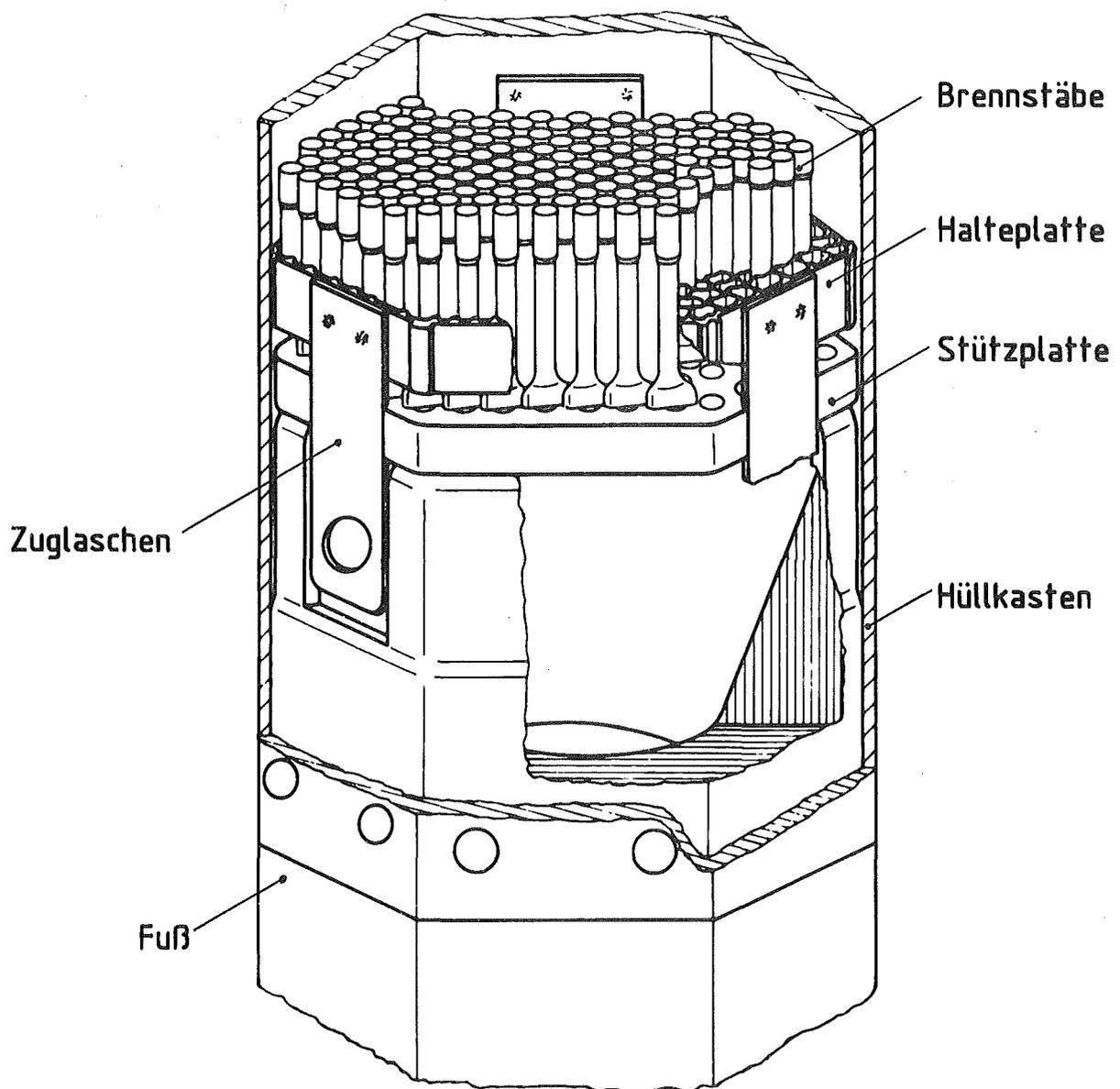
SNR 300



SNR 2

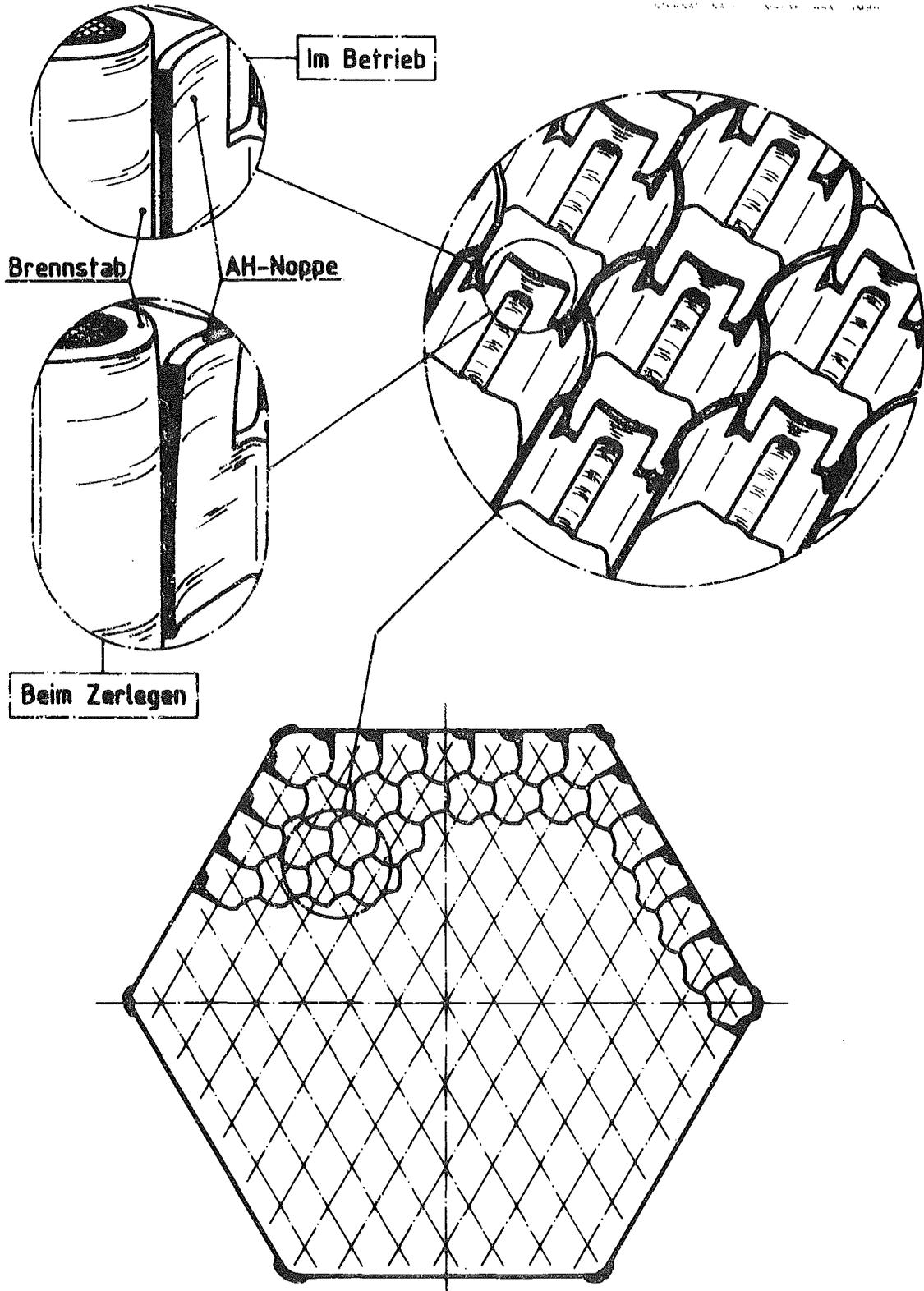


ENTWICKLUNG
VEREINFACHTER BRENNELEMENTFUSS



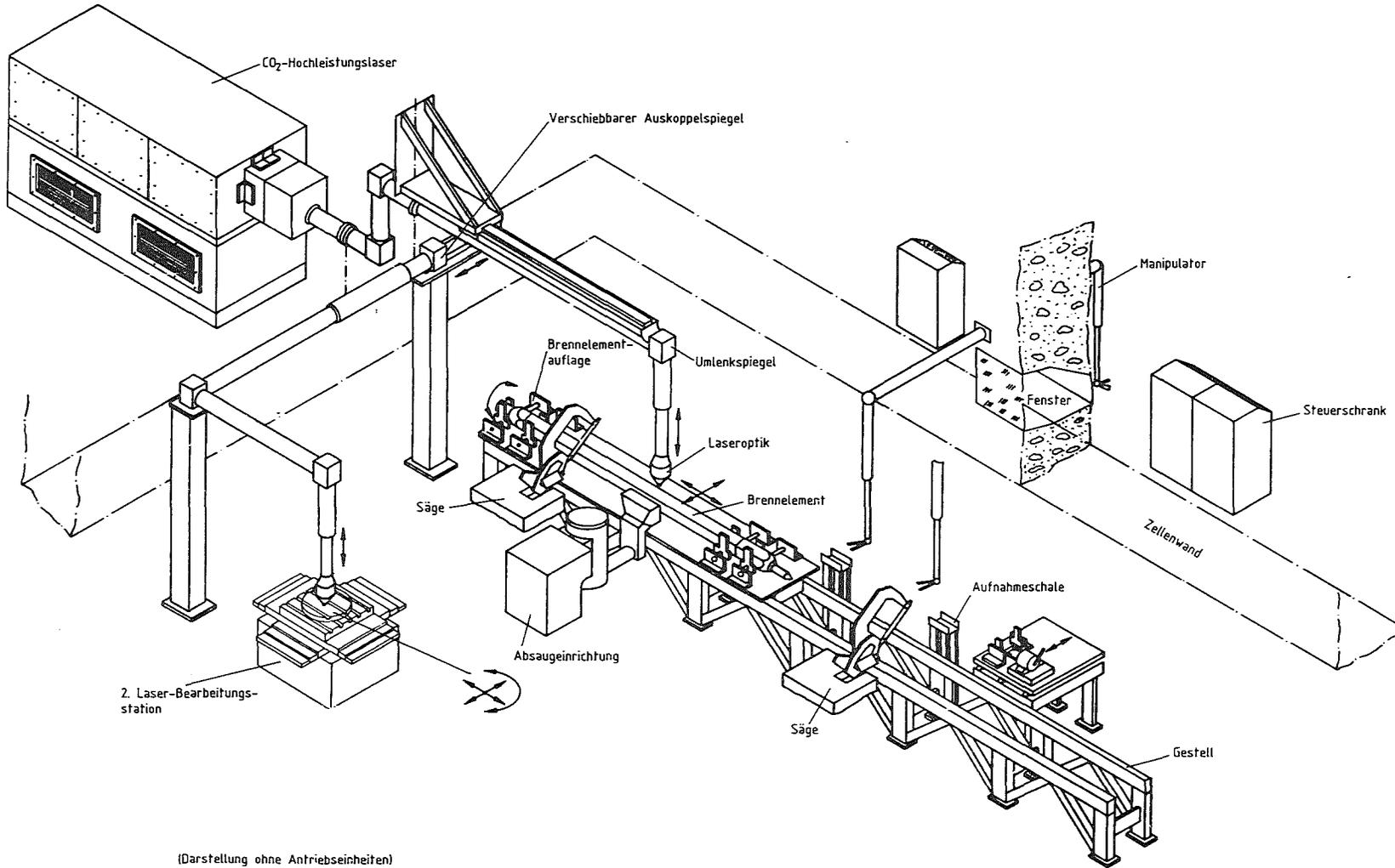
Stab- und Bündelbefestigung
fortschrittliches Schnellbrüterbrennelement

Abb. 7



Funkenerodierter Abstandshalter
(weiche Ausführung)

Abb. 8



Mock-up-Brennelementzerlegevorrichtung (Prinzipieller Aufbau)

Abb. 9

ZUR DERZEITIGEN KENNTNIS ÜBER DIE ZUSAMMENSETZUNG UND DEN
CHEMISCHEN ZUSTAND VON RÜCKSTÄNDEN BESTRAHLTER
SBR-BRENNSTOFFE NACH AUFLÖSUNG IN SALPETERSÄURE

H. Kleykamp

Kernforschungszentrum Karlsruhe

Die Zusammensetzung, der chemische Zustand und strukturelle Eigenschaften von Rückständen bestrahlter SBR-Brennstoffe nach der Auflösung in 7 - 10 n Salpetersäure werden besprochen. Der Rückstand des nach dem deutschen Standardverfahren hergestellten Mischoxids enthält auch bei mittleren Abbränden noch bis zu 30% PuO₂ bezogen auf die PuO₂-Ausgangskonzentration im Brennstoff. Dagegen ist die PuO₂-Konzentration im Rückstand des nach einem naß-chemischen Verfahren hergestellten AUPuC-Brennstoffs mit Werten <0,05% PuO₂ sehr gering. Die Spaltedelmetalle liegen im Rückstand in verschiedenen chemischen Zuständen vor; Verteilung und Konzentrationen werden angegeben.

Durch Wiederaufarbeitung des bestrahlten Uran-Plutonium-Oxids und Rückführung des gewonnenen Plutoniums in den Refabrikationsprozeß wird der Kreislauf des Schnellbrüterbrennstoffs geschlossen. Bei der Auflösung werden aber feste Rückstände beobachtet, die Plutonium enthalten, das dem Kreislauf verloren geht. Ferner treten im Rückstand Spaltprodukte auf, die Probleme bei der Konditionierung des Abfalls bereiten können. Durch Variation der Herstellungs- und Auflösungsbedingungen des Mischoxids kann man jedoch Menge und chemischen Zustand der Lösungsrückstände verringern bzw. optimieren. Hierzu wurden Auflösungsversuche an bestrahlten Brennstoffen durchgeführt, die nach älteren Standardverfahren und einem neuen Verfahren (AUPuC) hergestellt worden waren.

Für das Bestrahlungsexperiment DFR 455 im Rahmen der PSB-Brennelemententwicklung und für die KNK II-Erstcorebeladung (Testzone) wurde Uran-Plutonium-Oxid mit 30% Plutonium im Metallanteil eingesetzt, das durch mechanisches Mischen von UO₂, PuO₂ und reaktiviertem Vorsinterprodukt und nachfolgendes Pressen und Sintern hergestellt worden war. Die un-

gleichmäßige Uran- und Plutonium-Verteilung in den nach diesem Standardverfahren hergestellten Tabletten ist in /1/ dargestellt. Für die Auflösungsversuche in 7 bis 10 n Salpetersäure wurden aus dem Bestrahlungsexperiment DFR 455 Brennstababschnitte aus drei Stäben sowie aus KNK-II/1 Brennstababschnitte aus den Stäben Al.009 und 1B.395 des Brennelements 208 BN und der ganze Stab Al.1538 aus dem Brennelement 202 IA ausgewählt (Tab.1).

Im Rückstand des DFR 455- und des KNK-II/1-Brennstoffs sind vorwiegend Mischoxidreste aus der Säulenkristallzone und der unrestrukturierten Zone enthalten. In letzterer mit einem Anteil bis zu 50% des gesamten Brennstoffs wird keine Homogenisierung unter dem Einfluß der Bestrahlung erzielt. Die Auflösbarkeit eines durch die Fertigung bedingten, stark U/Pu-inhomogenen Brennstoffs kann während seines Reaktoreinsatzes nur dann verbessert werden, wenn die Stableistung den Wert 25 kW/m überschreitet und somit eine genügend hohe Temperatur zu einer partiellen Homogenisierung des Brennstoffs vorliegt. Bei hohen Stableistungen und einem ungünstigen O/M-Ausgangsverhältnis tritt andererseits eine radiale U/Pu-Entmischung des Brennstoffs mit einer relativen Pu-Anreicherung bis zu 50% der mittleren Pu-Konzentration am Zentralkanal auf, die zu einer Verschlechterung der Auflösbarkeit führt, wenn die Pu-Konzentration den Wert 35% PuO₂ im Mischoxid übersteigt.

Rückstände aus beiden Bereichen des Brennstoffs aus DFR 455 /2,3/ und aus KNK-II/1 BE 202 IA /4/ wurden nachgewiesen. In neueren Untersuchungen an Lösungsrückständen aus KNK-II/1 BE 208 BN wurde insbesondere der Einfluß der lokalen Stableistung auf die Homogenisierung und die Entmischung des Brennstoffs unter dem Einfluß der Bestrahlung und damit auf die Zusammensetzung des Rückstands analysiert. In verschiedenen Abschnitten der Stäbe Al.009 und 1B.395 mit 24 kW/m bis 44 kW/m lokaler Stableistung liegt der Rückstand zwischen 12 und 16% des zur Auflösung gelangten Brennstoffs. Die mittlere PuO₂-Konzentration beträgt, bezogen auf den gesamten Rückstand, zwischen 45 und 50%. Die Partikel stammen im wesentlichen aus der unrestrukturierten Brennstoffzone mit Werten bis 98% PuO₂ und zum geringen Teil aus der Säulenkristallzone. Röntgenfeinstrukturuntersuchungen an einem der Rückstände ergeben eine kubische

Tab.1. Rückstände bestrahlter SBR-Brennstoffe nach der Auflösung in 7-10 nHNO₃.

Stand: 1. Februar 1984

Bestrahlungsexperiment Brennstab	DFR 455 8A5/1A61/1A85	KNK-II/1 208 BN A1.009	KNK-II/1 202 IA A1.1538	Athena Vb RS1TP	FR 2-Vg.7/II KVE 165 - 7.83
Brennstoff	$U_{0,7}Pu_{0,3}O_{2-x}$	$U_{0,7}Pu_{0,3}O_{2-x}$	$U_{0,7}Pu_{0,3}O_{2-x}$	$U_{0,82}Pu_{0,18}O_{1,97}$	$U_{0,76}Pu_{0,24}O_{1,96}$
Herstellungsverfahren	Standard	Standard	Standard	Migra	AUPuC
Lokaler Abbrand	4 - 5%	1,2%	$\bar{A} = 4,2\%$	11,3%	1,2%
Lokale Stableistung	38 - 45 kW/m	29 kW/m	$\bar{\chi} = 34$ kW/m	40 kW/m	50 kW/m
Rückstand/Brennstoff	1,6 - 3,9%	15%	14%	1,6%	0,22%
UO ₂ *	25 - 35%	50%	35%	5%	} < 5%
PuO ₂ + AmO ₂ *	35 - 45%	47% + (< 1%)	60% + 2%	5%	
Spaltprodukt-Legierungen*	25%	< 1%	< 2%	40%	0%
Spaltprodukt-Oxidhydrate*	5%	0%	0%	0%	> 95%
Verunreinigungen*	-	-	-	50%	-
PuO ₂ ⁺	1,9 - 4,5%	25%	30%	0,5%	< 0,05%

* bezogen auf den Rückstand

+ bezogen auf die PuO₂-Ausgangskonzentration im Brennstoff

Phase mit der Gitterkonstante $a = 543,4 \text{ pm}$. Daraus folgt, daß die CaF_2 -Struktur des Brennstoffrückstands erhalten bleibt und das O/M-Verhältnis bei etwa 2,00 liegt. Die Sekundärpartikelgröße des Rückstands aus dem Brennstoff der beiden Stäbe ist jedoch stark unterschiedlich, im Stab A1.009 mit Werten bis zu 1 mm wesentlich größer als im Stab 1B.395 mit Werten bis zu 0,1 mm (Abb.1). Die Brennstoffe stammen aus verschiedenen Chargen und wurden bei verschiedenen Temperaturen gesintert. Es ist möglich, daß auch im Hinblick auf die Ergebnisse an DFR 455 ein bisher verborgener Parameter beim Auflösungsprozeß für die Menge des Rückstands und die unterschiedlichen Sekundärpartikelgrößen verantwortlich ist.

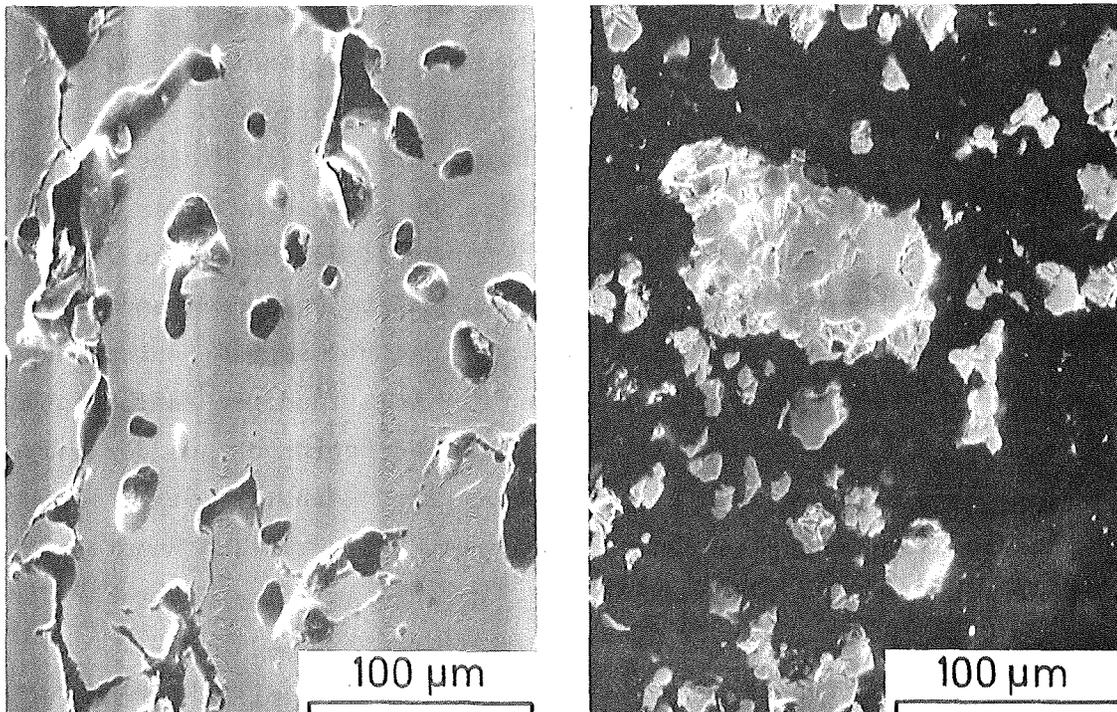


Abb.1. Sekundärelektronenoptische Gefügebilder der Rückstände aus der Auflösung von KNK-II/1-Brennstoff, Brennelement 208 BN. Links: Stab A1.009 ($\chi_{\text{lokal}} = 29 \text{ kW/m}$), rechts: Stab 1B.395 ($\chi_{\text{lokal}} = 24 \text{ kW/m}$); PuO_2 -Konzentration 40-50%. Man beachte die unterschiedliche Partikelgröße der beiden Rückstände aus dem Brennstoff der Belgonucleaire-Fertigung.

In geringer Konzentration werden Ausscheidungen der während des Reaktoreinsatzes gebildeten hexagonalen Mo-Tc-Ru-Rh-Pd-Legierung beobachtet,

die vom Brennstoff umschlossen sind und somit in der Salpetersäure nicht aufgelöst werden konnten oder frei vorliegen und wegen ihrer Größe bis zu etwa 10 µm nicht vollständig in Lösung gegangen sind. Der Anteil der aus der salpetersauren Lösung wieder ausgefallenen und als Oxidhydrate beobachteten Spaltedelmetalle ist in diesen Experimenten gering.

Die Auflösungsversuche an einem bis zu einem Abbrand von 11,3% bestrahlten, nach einem trockenen Mischgranulat-Verfahren hergestellten Brennstoff zeigen, daß die PuO_2 -Konzentration im Rückstand auch gering sein kann und in diesem Fall nur 5% bezogen auf den gesamten Rückstand beträgt.

Die Forderung nach einer verbesserten Auflösbarkeit des Mischoxids bedingte die Entwicklung neuer Brennstoffe. Der durch Kofällung als Ammoniumuranylplutonylcarbonat (AUPuC) und anschließende Calcinierung hergestellte Brennstoff zeichnet sich bereits vor Bestrahlung durch eine sehr gute Uran-Plutonium-Homogenität und Auflösbarkeit aus /1/. Dieses Mischoxid wurde zunächst in der Zusammensetzung $\text{U}_{0,76}\text{Pu}_{0,24}\text{O}_{1,96}$ innerhalb der Versuchsgruppe Vg.7/II im FR 2 bestrahlt. Der Brennstoff des Prüflings 7/83 aus dem KVE 165 wurde in 7 n Salpetersäure aufgelöst. Der Rückstand beträgt 0,22% bezogen auf den Brennstoff. Darin werden vorwiegend Spaltprodukt-oxidhydrate (>95%) beobachtet, die nach der vollständigen Auflösung der während des Abbrands gebildeten Mo-Tc-Ru-Rh-Pd-Legierung aus der salpetersauren Lösung durch Nachfällung entstanden sind (Tab.1). Die kationischen Hauptkomponenten sind Molybdän und Ruthenium. Der Rückstand konnte nicht isoliert werden, da die Masse nur 27 mg betrug, er wurde daher für die Analyse zusammen mit dem Filter als Schliff präpariert (Abb.2). Das rasterelektronenmikroskopische Auflösungsvermögen reicht für eine Bestimmung der Primärpartikelgröße der Oxidhydrate nicht aus; sie liegt unter 100 nm. Eine rohe Massenbilanz ergibt, daß etwa 80% des bei der Spaltung des Brennstoffs erzeugten Rutheniums im oxidischen Rückstand vorliegen.

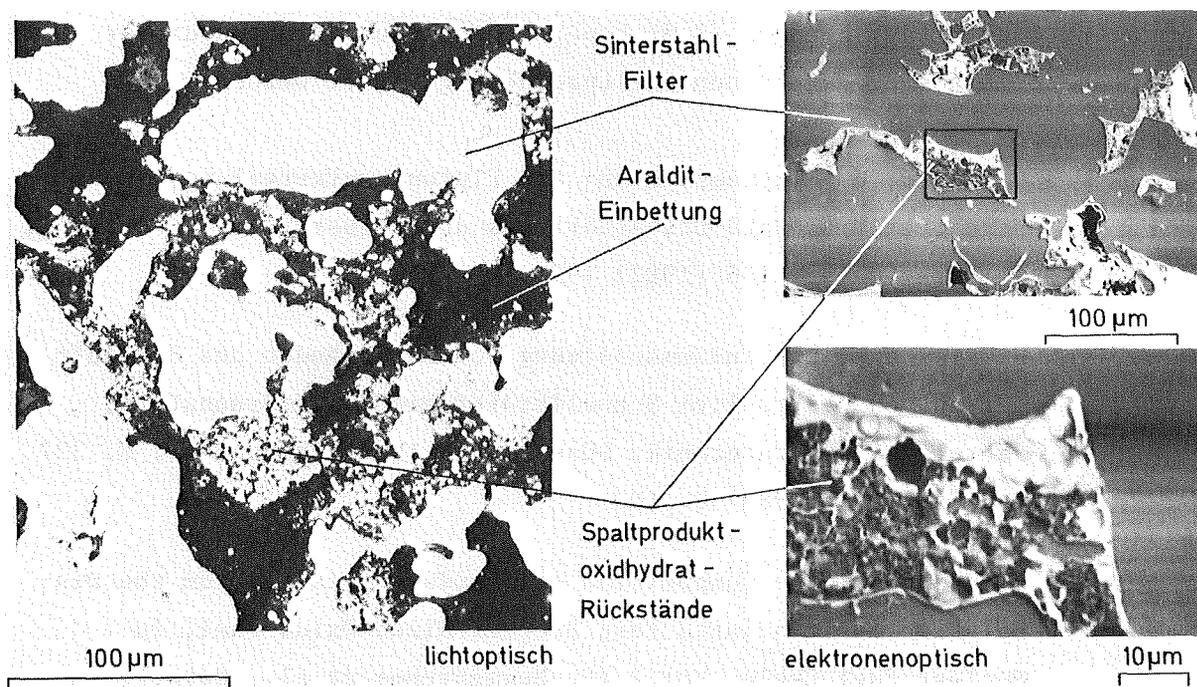


Abb.2. Lichtoptische und sekundärelektronenoptische Gefügebilder von Sekundärpartikeln aus dem Lösungsrückstand von bestrahltem Vg.7/II-AUPuC-Mischoxid; Rückstände in den Poren des Sinterstahlfilters: Spaltproduktoxidhydrate des Molybdäns, Technetiums und der Edelmetalle.

Die Auflösbarkeit des KNK-II/1-Brennstoffs wird durch die während der Bestrahlung sich kompensierenden Einflüsse Mischkristallbildung und makroskopische Entmischung im Temperaturgradienten auch bei einem Abbrand bis zu 10% nicht wesentlich verbessert. 25 bis 30% des PuO_2 bezogen auf dem PuO_2 -Anteil im Brennstoff bleiben ungelöst. Dagegen ist die Auflösbarkeit des Vg.7/II-AUPuC-Brennstoffs als sehr gut zu bezeichnen. Die PuO_2 -Konzentration ist mit Werten $<0,05\%$ bezogen auf den PuO_2 -Anteil im Mischoxid noch niedriger als die für unbestrahlten AUPuC-Brennstoff angegebene Konzentration /1/. Es ist jedoch dabei zu berücksichtigen, daß der PuO_2 -Anteil im AUPuC-Brennstoff niedriger als im KNK-II/1-Brennstoff und somit die Wahrscheinlichkeit geringer ist, daß bei der Entmischung unter dem Einfluß des Temperaturgradienten die "kritische" Konzentration von 35% PuO_2 erreicht wird. Mit Hinblick auf den

chemischen Zustand des Molybdäns, Technetiums und der Spaltedelmetalle ist noch nicht geklärt, unter welchen Bedingungen die bereits in früheren Untersuchungen /2,3/ beobachteten Nachfällungen dieser zunächst in Lösung gegangenen Spaltprodukte gebildet werden.

- /1/ D. Hanus, H. Kleykamp, Uran- und Plutonium-Verteilung in unbestrahltem Mischoxid-Brennstoff aus der industriellen Fertigung, J. Nucl. Mater. 106 (1982) 199
- /2/ H. Kleykamp, Die Zusammensetzung von Rückständen aus der Auflösung von bestrahltem Schnellbrüter-Mischoxid-Brennstoff, Jahrestagung Kerntechnik, Düsseldorf, 1981, Tagungsber. S. 327 und KfK 3278 (1982) S. 100
- /3/ H. Kleykamp, The Composition of Residues Arising from the Dissolution of Irradiated Fast Breeder Mixed Oxide Fuel, in Nuclear Fuel Cycle, Vol.2 (F. Baumgärtner et al., Edts.), Weinheim 1982, S.151
- /4/ H. Kleykamp, Einfluß der Herstellungsverfahren auf die Zusammensetzung des Lösungsrückstands von bestrahltem Schnellbrüter-Mischoxidbrennstoff, Jahrestagung Kerntechnik, Berlin, 1983, Tagungsber. S. 528

VERGLEICH BERECHNETER UND ROUTINEMÄSSIG GEMESSENER
INVENTARE BESTRAHLTER KNK II/1-BE SOWIE BESTIMMUNG
VERGLASUNGSRELEVANTER SPALTPRODUKTE

H. W. Wiese

Kernforschungszentrum Karlsruhe

1. Einleitung

Die verlässliche Vorhersage der Inventare bestrahlter Reaktor-brennstoffe im Hinblick auf Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung erfordert eine Absicherung der Daten und theoretischen Methoden durch Vergleiche mit Messungen. Für Brennstoffe aus thermischen Reaktoren wurde dies unter Verwendung von Präzisionsmessungen an verschiedenen DWR-Brennstoffen und durch Einsatz genauer Zell-Abbrand-Verfahren mit gutem Erfolg bereits durchgeführt /1/. Für einen ersten Vergleich zwischen Messungen und Rechnungen für Brennstoffe aus dem Schnellen Reaktor KNK werden in diesem Beitrag routinemäßige Nachbestrahlungsanalysen an den KNKII/1-Brennelementen NY-202-IA und NY-203-IA von Dreßler, Habicht und Ertel herangezogen /2,3/. Die Rechnungen dienten auch der Bestimmung von Spaltprodukten, die wichtig im Hinblick auf die Verglasung des Abfalls sind.

2. Charakteristika der KNK-Brennelemente und der Bestrahlung

Die aufgearbeiteten Brennelemente NY-202-IA und NY-203-IA waren benachbarte Kranzelemente der Testzone der KNK-II/1. Der Coreteil der Brennelemente von 60 cm Höhe war mit $(U, Pu)O_2$, die oberen und unteren axialen Blanketteile von jeweils 20 cm Höhe mit UO_2 beladen. Tabelle 1 enthält die Brenn- und Brutstoffzusammensetzungen bei Beginn der Bestrahlung.

Tab. 1: Brenn- und Brutstoffzusammensetzung [g/BE] am Bestrahlungsanfang und integrale Bestrahlungsdaten der KNK-II/1-Brennelemente NY-202-IA und NY-203-IA

Nuklid	NY-202-IA /4/		NY-203-IA /5/	
	Core	Blanket	Core	Blanket
U 235	13833.	39.	13512.1	31.65
U 238	1041.	15614.	1177.1	15793.
U (total)	14874.	15653.	14689.2	15825.
Pu 238	45.0		43.0	
Pu 239	4925.		4810.5	
Pu 240	894.		873.5	
Pu 241	323.		312.5	
Pu 242	77.		74.2	
Pu (total)	6388.		6114.4	
Am 241	124. a)		124.3	
U+Pu+Am	21262.	15653.	20928.	15825.
U 235/U Pu/(U+Pu)	93% 30%	0.25%	92% 29.4%	0.25%
Vollast- tage		192.5		400.
Mitt.Abb. [Gwd/t]	39.1 22.8	.63	76.	1.2 43.8

a) geschätzt nach dem Anfangswert von Am 241 bei NY-203-IA; Pu 241 wurde entsprechend reduziert.

Die in den Abbrandrechnungen verwendeten, vereinfachten Bestrahlungsgeschichten /5/ sind in Tab.2 zusammengestellt.

Tab.2: Zeitlicher Verlauf (vereinfacht) der Leistung in den BE-Coreteilen

NY-202-IA		NY-203-IA							
Tage ^{a)}	MW ^{b)}	Tage ^{a)}	MW ^{c)}	Tage	MW	Tage	MW	Tage	MW
87.	1.729	41.	1.5	714.	0.	1281.6	0.	1495.1	0.
187.	0.	84.	0.	794.	3.9	1302.4	3.9	1517.1	2.54
212.	4.326	111.8	1.22	855.	0.	1325.1	0.	1535.1	0.
322.	0.	193.8	0.	872.5	1.63	1348.1	2.73	1542.1	3.63
367.	4.326	222.	1.63	928.	0.	1365.1	0.	1548.9	2.54
579.	0	313.7	0.	941.4	4.06	1407.1	2.35	1591.1	1.82
660.	4.326	344.	4.06	1073.	0.	1437.1	0.		
720.	0.	455.	0.	1133.5	1.79	1462.1	2.73		
736.	1.729	498.	4.06	1179.	0.				
				1219.6	3.9				

a) Zeit ab Bestrahlungsanfang

b) Leistung erzeugt in 21.262 kg Schwermaterial

c) Leistung erzeugt in 20.928 kg Schwermaterial

Bei der Aufarbeitung der KNK-BE wurden Brenn- und Brutstoff gemeinsam aufgelöst und die in den Lösungen vorhandenen Massen und Aktivitäten ausgewählter Nuklide bestimmt.

In der Rechnung werden wegen der im Core- und axialen Brutmantel unterschiedlichen Energieverteilung der Neutronen (Spektrum) und Leistung die Inventare separat ermittelt und anschließend addiert. Die für die Blanketabbrandrechnung benötigte Blanketleistung ergibt sich aus einer 3d-Diffusionsrechnung und unter Berücksichtigung axialer Transporteffekte für frische BE zu 1.2% der Coreleistung /6/. Durch den Aufbau von Plutonium erhöht sich dieser Anteil im Laufe der Bestrahlung; er erreicht nach 255 Vollasttagen 1.3% /6/.

Bei näherungsweise linearem Anstieg der Blanketleistung gilt somit mit T in Vollasttagen und $P_C(T)$ als Coreleistung, $P_{Bl}(T)$ als Blanketleistung:

$$P_{Bl}(T) \approx (0.012 + 4.706 \cdot 10^{-6} T) \cdot P_C(T)$$

3. Nukleare Daten und Rechenverfahren

Die Veränderung des Uran- und Plutoniuminventars während der Bestrahlung, der Aufbau der Transplutone Americium und Curium und die Bildung der Spaltprodukte sind bestimmt durch das KNK-spezifische Neutronenspektrum (verschieden für Core- und Blanketbereiche) und die nuklearen Basisdaten der Nuklide im Reaktor. Die für die durchzuführenden Abbrandrechnungen benötigten effektiven Neutronenwirkungsquerschnitte der schweren Kerne wurden aus dem 26-Gruppen-KFK-INR-Satz /7/ unter Verwendung neuester Evaluationen für Am- und Cm-Isotope /8/ durch Kondensation mit Neutronenspektren aus vorliegenden 3d-Diffusionsrechnungen für den frischen Reaktor mit bis zur Coremittelebene eingefahrenen Regelstäben berechnet /6/ -Tab.3. Der Neutroneneinfangsquerschnitt von Pu240 wurde entsprechend dem KfK-INR2-Satz korrigiert /10/. Bei Einsatz dieser Wirkungsquerschnitte über die gesamte Bestrahlungszeit bleibt die Änderung des Neutronenspektrums und die variierende Stellung der Regelstäbe unberücksichtigt. Eine Vergleichsrechnung für das Core mit Wirkungsquerschnitten, die mit dem Neutronenspektrum im Core nach 256 Vollasttagen /9/ bei gezogenen Regelstäben kondensiert wurden, ergab jedoch praktisch keine Änderung (<1%) in den interessierenden Konzentrationen und Aktivitäten, d.h. die Änderung des Neutronenspektrums spielt im Core eine untergeordnete Rolle. Der Einfluß der größeren abbrandbedingten Änderung der Neutronenwirkungsquerschnitte im Blanket wurde durch Berücksichtigung der Querschnittsänderungen, wie sie von Croff /13/ für das axiale Blanket eines typischen schnellen Reaktors angegeben werden, untersucht. Im Blanket des BE NY-203-IA ändert sich dabei z.B. die Menge an Pu239 um 9%, die Menge an Pu240 um 22%. Da jedoch das Blanket-Pu nur etwa 1.4% des Core-Pu ausmacht, bleibt das Gesamtinventar durch Querschnittsänderungen im Blanket praktisch unbeeinflusst.

Für die Inventarbestimmung im Gesamtbrennelement dürfen daher die in Tab.3 zusammengestellten Wirkungsquerschnitte frischer BE verwendet werden.

Tab.3: Effektive 1-Gruppen-Wirkungsquerschnitte im Core und axialen Blanket frischer Testzonen-Kranzelemente der KNKII /6/

Nuklid	Core		Blanket	
	σ_c [b]	σ_f [b]	σ_c [b]	σ_f [b]
U 235	.282	1.48	.652	2.15
U 236	.310	.218	.681	.121
U 238	.182	.102	.267	.054
Np237	.739	.619	1.85	.393
Pu238	.327	1.31	.805	1.18
Pu239	.197	1.71	.719	2.17
Pu240	.250 ^{*)}	.659	1.70 ^{*)}	.451
Pu241	.265	1.96	.693	2.92
Pu242	.302	.541	.829	.333
Am241	.952	.586	2.10	.354
Am242	.343	2.34	.723	3.61
Am243	.675	.520	1.85	.305
Cm244	.330	.807	.894	.542

^{*)} korrigiert entsprechend dem KFKINR-2-Gruppenkonstantensatz /10/

Die Querschnittsdaten der Spaltprodukte und der in Tab.3 nicht aufgeführten schweren Kerne sowie die Zerfallskonstanten der radioaktiven Nuklide etc. entstammen der alten Schnellreaktordatei des Rechenprogramms ORIGEN /15/. Da die Spaltproduktquerschnitte dieser Datei nicht unter Wichtung mit dem KNK-Spektrum gebildet wurde, haben berechnete Mengen von Spaltprodukten, für deren Bildung Neutroneneinfangreaktionen eine Rolle spielen, z.B. Cs134, nur orientierenden Charakter. Dem wird beim späteren Vergleich mit Messungen Rechnung getragen. Die Spaltproduktausbeuten wurden entsprechend neueren Angaben von Rider /11/ korrigiert. Für die Inventarbestimmung wurde das Rechenprogramm KORIGEN /1/ eingesetzt.

4. Vergleich von Rechnungen und routinemäßigen Messungen

Die experimentellen Nachbestrahlungsanalysen wurden für die Gesamtmengen an Uran und Plutonium und für deren relative Isotopenzusammensetzungen, für einige Americium-, Curium- und Neptuniumisotope sowie für die Radioaktivitäten einer Reihe von Spaltprodukten vorgenommen. Für diese routinemäßigen Messungen gilt:

- Ungelöstes Plutonium oder Plutonium in schwerlöslichen Verbindungen (Molybdate) wird nicht erfaßt;
- Spaltprodukte in schwerlöslichen Verbindungen, die als Feedklärschlamm ausfallen, sowie adsorbierte Spaltprodukte entziehen sich der Messung.

Dies läßt eine Überprüfung der Rechenwerte durch die Meßwerte nur für das Gesamturan, die relative Plutoniumzusammensetzung und die Radioaktivitäten der Spaltprodukte Ce141, Ce144/Pr144, Cs134,137, Eu155 und Sb125 zu - Tab.4.

Tab.4 : Vergleich Rechnung/Messung für die KNKII/1-
Brennelemente NY-202-IA und NY-203-IA
Core + axiales Blanket

	NY-202-IA ^{a)}		NY-203-IA ^{b)}	
	Messung	Rechnung	Messung	Rechnung
U	29.0 kg	29.9 kg	28.74 kg	29.3 kg
Pu238	.70 %	.73 %	.77 %	.77 %
Pu239	77.6 %	77.2 %	78.5 %	78.2 %
Pu240	14.6 %	14.7 %	14.3 %	15.6 %
Pu241	5.1 %	6.0 %	4.9 %	4.0 %
Pu242	2.0 %	1.3 %	1.5 %	1.4 %
Ce141 ^{c)}	-	0.02 kCi	0.13 kCi	0.12 kCi
Ce/Pr144	14.5 kCi	16.8 kCi	21.7 kCi	23.4 kCi
Cs134 ^{c)}	-	0.15 kCi	0.40 kCi	0.52 kCi ^{a)}
Cs137	2.8 kCi	2.7 kCi	5.7 kCi	5.1 kCi
Eu155	0.21 kCi	0.23 kCi	0.28 kCi	0.38 kCi
Sb125 ^{c)}	-	0.27 kCi	0.21 kCi	0.44 kCi

- a) 1 Jahr nach Bestrahlungsende
- b) 10 Monate nach Bestrahlungsende
- c) bei NY-202-IA nicht gemessen
- d) abgeschätzt

Beim Gesamturan ergibt sich eine zufriedenstellende Übereinstimmung auf 3%. Bezüglich der Isotopenzusammensetzung des Urans ist folgendes anzumerken: U235 wurde γ -spektrometrisch durch Vergleich mit einem U235-Standard vermessen. Für das Brennelement NY-202-IA wurde dabei aus dem U235-Anteil und dem Gesamturan auf eine Menge an U238 im bestrahlten Brennstoff geschlossen, die größer als die im frischen Brennstoff vorhandene Menge ist. Dieses Ergebnis ist physikalisch inkonsistent, es läßt auf eine Unterschätzung des U235 um nahezu 10% schließen, die u.U. durch Ungenauigkeiten im verwendeten U235-Standard verursacht wurden /14/. Die gemessene Uranzusammensetzung ist daher für einen belastbaren Vergleich mit den Rechenwerten nicht geeignet.

Die Schwerlöslichkeit des Plutoniums ist im wesentlichen bedingt durch das Verfahren zur Herstellung des Mischoxids. Der in der Lösung befindliche Teil des Plutoniums hat dieselbe Isotopenzusammensetzung wie der nichtgelöste Teil. Zur Überprüfung der berechneten Zusammensetzung des Gesamtplutoniums kann daher die in der Brennstofflösung gemessene Zusammensetzung benutzt werden.

Es wird - Tab.4 - mit Ausnahme der höheren Pu-Isotope gute Übereinstimmung festgestellt: Pu239 auf 0.5%, im Mittel Pu240 auf 5% und Pu238 auf 2%. Die γ -spektrometrische Bestimmung von Pu241 ist wegen dessen schwacher γ -Intensität mit größerer Unsicherheit behaftet. Die α -spektrometrisch abgeschätzte Menge an Pu242 ist ebenfalls unsicher.

Für die Radioaktivitäten der Spaltprodukte Ce141, Ce144/Pr144 Cs137 und Eu155 ergibt sich eine zufriedenstellende Übereinstimmung zwischen Rechnung und Messung, im Mittel auf etwa 25%. Die für Cs137 orientierend berechnete Aktivität überschätzt den Meßwert um 20%. Für Sb125, das 10 Monate nach dem Ende der Bestrahlung etwa 1% der Aktivität der Hauptaktivitätslieferanten Ce144/Pr144 beträgt, ist die berechnete Aktivität etwa doppelt so groß wie die gemessene. Diese große Diskrepanz erfordert weitere Untersuchungen, sowohl in experimenteller als auch in theoretischer Hinsicht.

Ein vollständiger und aussagekräftiger Vergleich zwischen gemessenen und berechneten Nuklidkonzentrationen der KNK-Brennelemente erfordert eine genaue Angabe aller Verluste von Schwermetallen und Spaltprodukten sowie zugehörige Fehlergrenzen der Messungen. Diese Untersuchungen sind zur Zeit im Gange.

Darüberhinaus werden im jetzigen KNKII/2 Core eine Vielzahl von Proben aus Actiniden und Spaltprodukten bestrahlt. Die theoretischen und experimentellen Nachbestrahlungsanalysen werden die bisherigen guten Erfahrungen abrunden.

5. Verglasungsrelevante Spaltprodukte im KNK-Waste

Es wird vorgesehen, den HAW der beiden diskutierten KNK-Brennelemente zu verglasen. Unter dem Aspekt der Stabilität des Silikatglassystems kommt dabei den Elementen Mo, Ru, Rh, Pd und Te im HAW eine besondere Bedeutung zu /12/. Die berechneten Werte sind zur Information in Tab.5 zusammengestellt.

Tab.5 : KNKII/1-BE NY-202-IA und NY-203-IA:

Mengen [g/BE] verglasungsrelevanter Spaltprodukte

Element	Jahre nach dem Ende der Bestrahlung					
	2.		100.		10 ⁵	
	BE 202	BE 203	BE 202	BE 203	BE 202	BE 203
Mo	85.2	163.	85.2	163.	85.2	163.
Ru	56.2	108.	55.2	105.	61.0	116.
Rh	16.8	31.8	16.8	31.8	16.8	31.8
Pd	26.2	48.9	27.2	51.4	27.2	51.3
Te	13.5	25.9	13.7	26.2	14.1	27.0

Die schwache zeitliche Veränderung der Mengen dieser Elemente nach der Bestrahlung ist bedingt durch die Stabilität der jeweiligen Hauptisotope und den geringen Zuwachs durch den Zerfall längerlebiger Nuklide in den β -Zerfallsketten, z.B. Tc99 β Ru99 mit $\tau_{1/2}$ (Tc99) = $2.1 \cdot 10^5$ a. Da bei stabilen Spaltproduktelementen die unter Bestrahlung gebildeten Mengen den mittleren Abbränden proportional sind:

$$M_{\text{st.SPP}} \sim B, \quad B = \text{Abbrand in Gwd/t,}$$

und damit

$$M_{\text{st.SPP}}(B) = \frac{M_{\text{st.SPP}}(B_0)}{B_0} = B,$$

gilt mit B_0 aus Tab.1 z.B. für Molybdän

$$M_{\text{Mo}} = \frac{85.2}{22.8} = B = 3.74 \cdot B$$

Die Massen der gebildeten verglasungsrelevanten Spaltprodukte lassen sich auf diese Weise für jeden beliebigen Abbrand der Kranzelemente ermitteln.

6. Dank

Frau Dr. I. Broeders danke ich für die Bereitstellung der Wirkungsquerschnitts- und Leistungsdaten der KNK-Brennelemente.

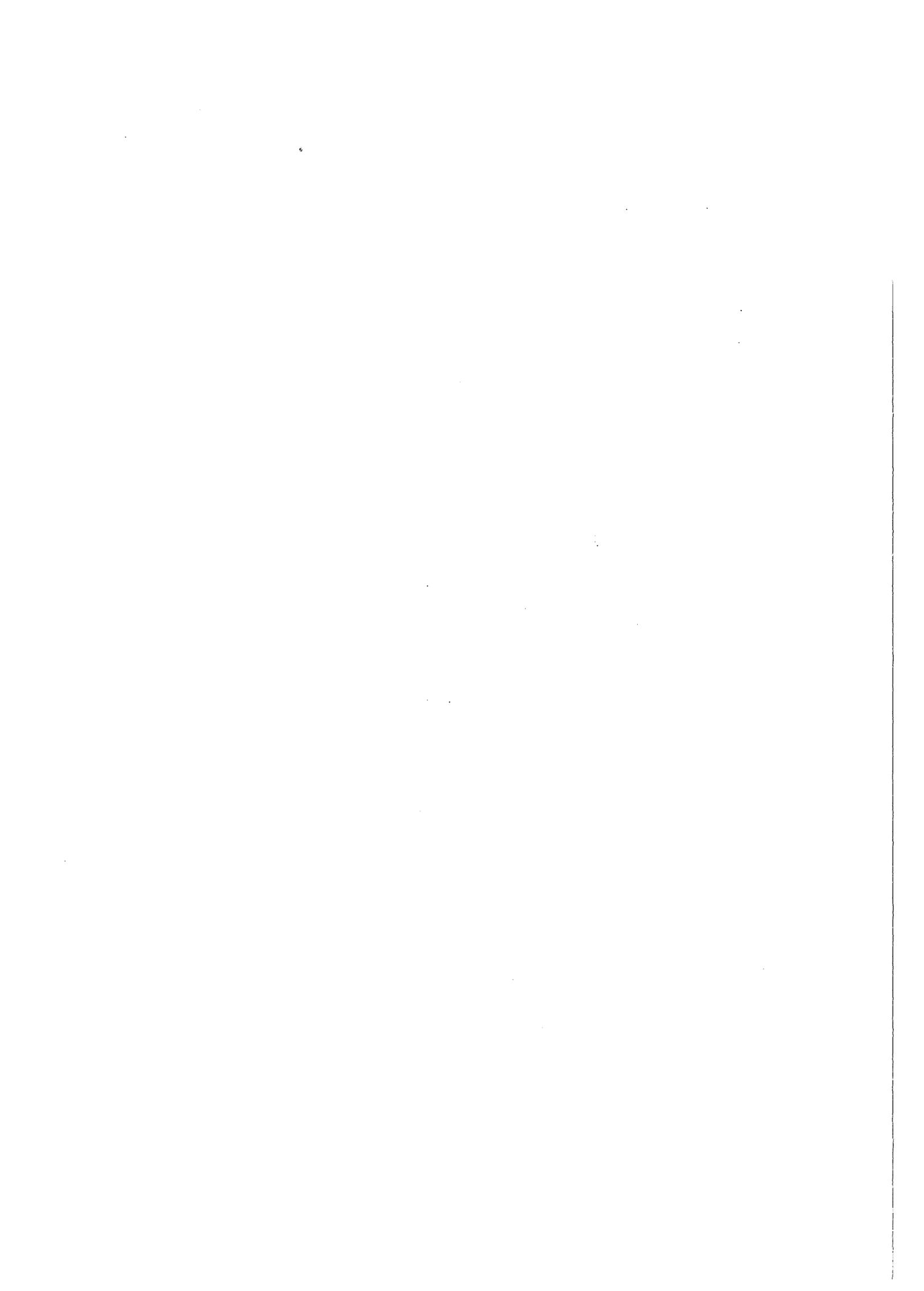
Mein Dank gilt auch Herrn Dr. H. Küsters, der durch anregende und konstruktive Kritik wesentlich zum Abschluß dieses Berichts beigetragen hat.

Für das sorgfältige Schreiben des Manuskripts bedanke ich mich bei Frau F. Timke.

Referenzen

- /1/ U. Fischer, H.W. Wiese,
Verbesserte konsistente Berechnung des nuklearen
Inventars abgebrannter DWR-Brennstoffe auf der Basis
von Zell-Abbrand-Verfahren mit KORIGEN
KfK 3014 (1983)
- /2/ P. Dressler, P. Ertel,
unveröffentlichter Bericht, 1983
- /3/ P. Dressler, W. Habicht, P. Ertel,
unveröffentlichter Bericht, 1983
- /4/ H. Lahr (KfK-PSB/PL),
persönliche Mitteilung
- /5/ Stepan (Interatom),
persönliche Mitteilung
- /6/ I. Broeders, B. Krieg, E. Stein (alle KfK-INR),
persönliche Mitteilung
- /7/ E. Kiefhaber,
The KfK-INR-Set of Group Constants; Nuclear Data Basis
and First Results of its Application to the Recalcu-
lation of Fast Zero-Power Reactors
KfK 1577 (1972)
- /8/ F.H. Fröhner, B. Goel, U. Fischer, H. Jahn,
Neutron Cross Section Evaluation for ^{241}Am , $^{242\text{m}}\text{Am}$, ^{243}Am
and ^{244}Cm
Proc. Int. Conf. on Nuclear Data for Science and Technology,
Antwerp, Belgium (1982)

- /9/ U.Weumann (Interatom)
persönliche Mitteilung an H.Küsters im Juli 1982
- /10/E.Kiefhaber (KfK-INR),
persönliche Mitteilung
- /11/B.F.Rider,
Compilation of Fission Product Yields
NEDO-12154-3(B) (1980)
- /12/J.Saidl (KfK-INE),
persönliche Mitteilung vom 11.03.1982
- /13/A.G.Croff, J.W.McAdoo, M.A.Bjerke
LMFBR Models for the ORIGEN2 Computer Code
ORNL/TM-7176/R1 (1983)
- /14/P.Dreßler (KfK-IHCH)
persönliche Mitteilung
- /15/M.J.Bell
ORIGEN-The ORNL Isotope Generation and Depletion Code
ORNL-4628 (1973)



ERFAHRUNGEN MIT DER AUFARBEITUNG VON KNK-BRENNSTOFF IN DER MILLI

H.-J. Bleyl

Kernforschungszentrum Karlsruhe

Die Tatsache, daß mit dem KNK-II in der Bundesrepublik Deutschland ein schneller Reaktor in Betrieb gewesen ist, verschaffte dem Institut für Heiße Chemie des Kernforschungszentrums Karlsruhe die Gelegenheit, der ihm bei Institutsgründung gestellten Aufgabe sehr konkret nachzugehen: die Wiederaufarbeitung von Brüterbrennstoff zu betreiben. Bis heute wurden etwa 20 kg abgebrannten KNK-Brennstoffs für Experimente eingesetzt.

Als Werkzeug dafür hat das Institut die Anlage MILLI zur Verfügung /1/. Sie ist dadurch gekennzeichnet, daß im baulichen Rahmen von heißen Zellen Apparate im Labormaßstab zur Durchführung des PUREX-Prozesses vorhanden sind. Als Extraktionsapparate sind Mischer-Absetzer in mehrstufiger Ausführung installiert. Das Stufenvolumen beträgt rund 50 ml, woraus zusammen mit anderen Randbedingungen folgt, daß der Durchsatz der Anlage im Bereich kg/Tag liegt. Die Durchgänge zwischen den Stufen haben eine lichte Weite von 4 mm, was für das hydraulische Verhalten der heterogen verteilten Lösungen und Reaktionsprodukte bedeutet, daß der bestimmungsgemäße Betrieb relativ schnell gestört werden kann.

Am stärksten interessieren Antworten auf die Frage, ob der PUREX-Prozeß auch für die Wiederaufarbeitung von hochabgebrannten Brüterbrennstoffen generell geeignet ist bzw. an welchen Punkten besondere Schwierigkeiten auftreten. Im Rahmen dieses Seminars wird von Erfahrungen berichtet, die bei Experimenten im 1. Extraktionszyklus gemacht wurden.

Die Daten der Brennstoffe für die 2 Experimente sind in Tabelle 1 zusammengestellt. Die Brennstoffe stammten aus Testelementen des KNK-II/1. Das Material unterschied sich wegen Abbrand und Kühlzeit erheblich in seiner spezifischen Aktivität. In beiden Fällen wurde Brennstoff aus der core-Zone mit dem des blanket-Bereiches gemischt.

Tab. 1: Angaben zu den Brennstoffen

Herkunft	BE NY 208 BN	BE NY 203 IA
Mittl. Abbrand in der core-Zone	11700 MWd/t	74000 MWd/t
Kühlzeit bis zum Experiment	25 Monate	10 Monate

Der Brennstoff mit der geringeren spezifischen Aktivität wurde nach dem in Abb.1 angegebenen Fließschema aufgearbeitet /2/. Es wurde ein Kodekontaminationsverfahren durchgeführt. Die Brennstofflösung war etwa 1 molar an Uran und Plutonium, der Plutoniumanteil betrug 11%, die Summe der γ -strahlenden Spaltprodukte belief sich auf 27 Ci/l. Das extraktionschemische Gleichgewicht wird durch die ebenfalls in Abb.1 dargestellten Konzentrationsprofile wiedergegeben. Für Uran, Plutonium und Wasserstoffionen sind die Zahlen der Ordinate mit der Dimension g/l zu lesen, während für die Spaltprodukte die Prozentangabe bezogen auf ihre mit Uran vergesellschafteten Konzentration in der Brennstofflösung gilt.

Uran und Plutonium wurden innerhalb von 7 Stufen bis auf einen Rest von $\leq 0,1\%$ extrahiert. Im Waschextraktor wurden aus der das Extraktionsmittel führenden Phase nur geringe Mengen von Uran und Plutonium rückextrahiert, der Anteil der Spaltprodukte dagegen noch deutlich vermindert. Die hieraus resultierenden Trennfaktoren gleichen jenen, die beim PUREX-Prozeß üblicherweise erreicht werden. Das Experiment wurde über einen Zeitraum von 82 Stunden betrieben, innerhalb denen das hydraulische Geschehen mit nur einer erkennbaren Störung ablief.

Der Brennstoff mit der höheren spezifischen Aktivität wurde nach einem Fließschema aufgearbeitet, das im 1. Extraktionszyklus neben der Dekontamination der Spaltprodukte auch die Uran/Plutonium-Trennung beinhaltet. Die wesentlichen Details sind aus den Abb. 2 und 3 ersichtlich. Danach war die Brennstofflösung etwa 0,8 molar an Uran und Plutonium, der Plutoniumanteil betrug 13% und die γ -strahlenden Spaltprodukte summierten sich auf 220 Ci/l. Die Extraktionsmittellösung wurde wiederum in einer Konzentration von 30% angewandt.

Uran und Plutonium wurden innerhalb weniger Stufen weitgehend extrahiert, in beiden Phasen ist ein sog. tailing relativ ausgeprägt, aber die Verluste liegen wiederum bei $\ll 0,1\%$. Im Bereich des Waschextraktors ist auch hier die Rückextrahierung von Uran und Plutonium geringfügig. Das gleiche gilt bei den Spaltprodukten für Cäsium und Cer, während Zirkon und Ruthenium wieder deutlich ausgewaschen werden. Auffallend ist, daß die in der Extraktionsmittelfase verbleibenden Anteile der Spaltprodukte genauso klein wie und teilweise sogar noch kleiner als im zuerst berichteten Experiment waren. Das bedeutet mit anderen Worten gesagt, daß bei der Wiederaufarbeitung des bezüglich seiner spezifischen β/γ -Aktivität um etwa den Faktor 10 aktiveren Brennstoffe gleich hohe und teilweise bessere Trennfaktoren erreicht wurden.

Zum Verständnis der Trennfaktoren kann verschiedenes in Rechnung gestellt werden. Zum einen hat die Zersetzung des Tri-butyl-phosphats in geringerem Umfang als erwartet stattgefunden. Nach einmaligem Durchlaufen des Extraktionszyklus wurden maximal 50 mg Di-butyl-phosphat /l festgestellt. Das Extraktionsmittel wurde nicht rezykliert. Zum anderen wurde die Brennstofflösung kurz vor ihrer Einspeisung in den Extraktor einer erneuten Fest/flüssig-Trennung mit Hilfe einer Kieselgursäule unterworfen. Damit sollten hochradioaktive Partikel, die als Keime für die Bildung von relativ stabilen, den normalen hydraulischen Phasenfluß behindernden Suspensionen angesehen werden, zurückgehalten werden. Weiter ist die Molarität der Waschsäure von 3 M im ersten Experiment auf 1,5 M geändert worden, was die Abtrennbarkeit des Zirkons prinzipiell begünstigt, bei Ruthenium sonst allerdings das Gegenteil bewirkt. Schließlich sei bemerkt, daß während der Experimentdauer

von 96 Stunden nur 3 Störungen des hydraulischen Geschehens festgestellt wurden.

Die Uran/Plutonium-Trennung (Abb.3) wurde mit dem Reduktionsmittel Uran-IV, das an 2 Stellen als Lösung in den Extraktor eingespeist wurde, bewirkt. Die Konzentrationsprofile lassen erkennen, daß der Gehalt der Extraktionsmittelphase an Plutonium fortlaufend stark abgebaut wurde und nach 8 Stufen schließlich den Trennfaktor $2 \cdot 10^5$ ergab. Auf der anderen Seite wurde das Reduktionsmittel aus der wässrigen Phase langsamer extrahiert und verblieb am Ende mit einer Konzentration, die zu einem scheinbaren Trennfaktor von 650 führten. Im Experiment mit dem Brennstoff geringerer spezifischer Aktivität wurde die Uran/Plutonium-Trennung im 2. Zyklus durchgeführt. Dabei wurden das elektrochemische Reduktionsverfahren eingesetzt und ähnliche Trennergebnisse erreicht.

Nach dem Vergleich der Trennergebnisse zweier Experimente mit Brüterbrennstoff unterschiedlicher spezifischer β/γ -Aktivität soll eine Betrachtung der Resultate der Wiederaufarbeitung von UO_2 -Brennstoff angeschlossen werden. Die Resultate stammen aus Experimenten, bei denen Brennstoffe nahezu gleicher spezifischer β/γ -Aktivität eingesetzt und die ebenfalls in MILLI durchgeführt worden waren. Aus 2 solchen Experimenten sind die Trennfaktoren für die am schwierigsten abzutrennenden Spaltprodukte Zirkon und Ruthenium in Tab. 2 denen des Brüterbrennstoffexperimentes gegenübergestellt. Sie geben das Ergebnis im Uran- und im Plutoniumprodukt bezogen auf die Brennstofflösung wieder. Die Zahlen eines Bezugspunktes unterscheiden sich nicht systematisch und differieren bis zum Faktor 2, in einem Fall um eine Größenordnung. Bei einer fallweisen Bewertung der Trennfaktoren kann man darüberhinaus Unterschiede in Details der Fließschemata und in Randbedingungen der Anlage zur Erläuterung heranziehen.

Tab. 2: Trennfaktoren für Zr-95, Ru-106 und Pu im Uran- bzw. Plutoniumprodukt, bezogen auf die Brennstofflösung

Brennstoff	UO ₂	UO ₂	SBR Mox
γ-Aktivität	150 Ci/l	230 Ci/l	220 Ci/l
Zr-95 _u	3,5·10 ³	4,0·10 ³	8,6·10 ³
Zr-95 _{pu}	0,4	0,3	0,2
Ru-106 _u	2,0	0,6	6,5
Ru-106 _{pu}	1,5	0,8	1,3
Pu _u	3·10 ³	5·10 ³	2·10 ⁵

Bei den Resultaten für die Uran/Plutonium-Trennung liegt das Ergebnis mit Brüterbrennstoff deutlich höher. Hierzu trug wesentlich bei, daß die Betriebsanalytik zur Zeit des Brüterbrennstoffexperiments Plutonium bis zu einer tiefer gelegenen Nachweisgrenze bestimmen konnte und daß der Plutoniumanteil des Brennstoffs höher war. Insgesamt legen die Ergebnisse die Aussage nahe, daß die Leistungsfähigkeit des PUREX-Prozesses für die Wiederaufarbeitung von hochabgebranntem Brüterbrennstoff ähnlich hoch ist wie für die Wiederaufarbeitung von Brennstoff aus thermischen Reaktoren. Die Grenzen dieser Aussage liegen bei den eingangs erwähnten apparativen Besonderheiten sowie bei der nur kurzen Experimentdauer bzw. der geringen Häufigkeit. Im Institut für Heiße Chemie können Langzeiteffekte und auch das Verhalten technischer Apparate unter heißen Bedingungen nicht studiert werden.

Die Leitung der in diesem Vortrag vorgestellten Experimente lag bei Herrn Dr. W. Ochsenfeld. An der Ausführung waren vor allem die Mitarbeiter der Arbeitsgruppe MILLI und des Bereiches Betriebsanalytik beteiligt.

- /1/ W. Ochsenfeld et al., IAEA-SM-209/25 (1976)
- /2/ H.-J. Bleyl in W. Marth et al., KfK-3278, 93-99 (1982)
- /3/ W. Ochsenfeld et al., KfK-2558 (1977)

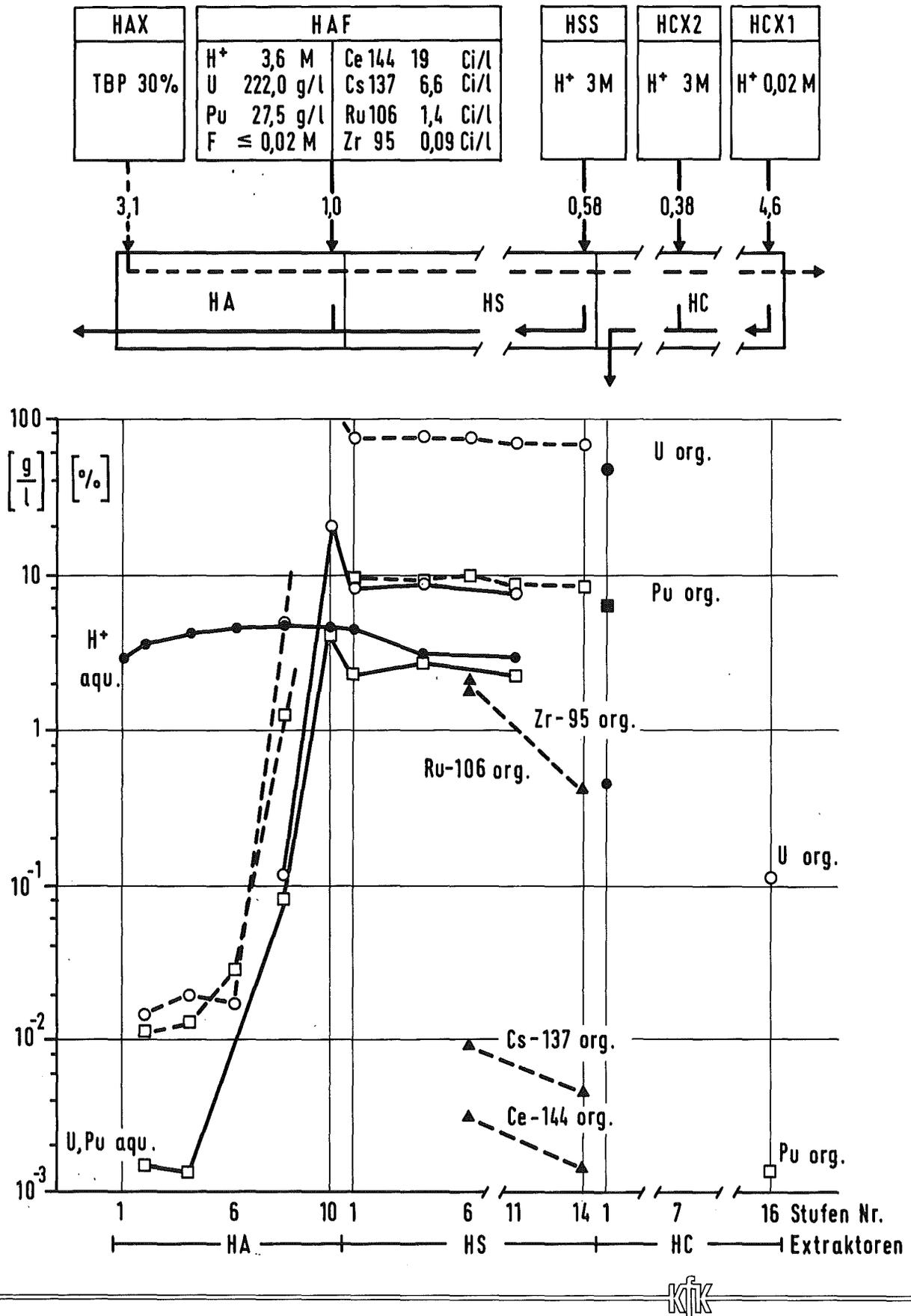


Abb.1 Fließschema u. Konzentrationsprofile beim Exp. mit Brennstoff 208

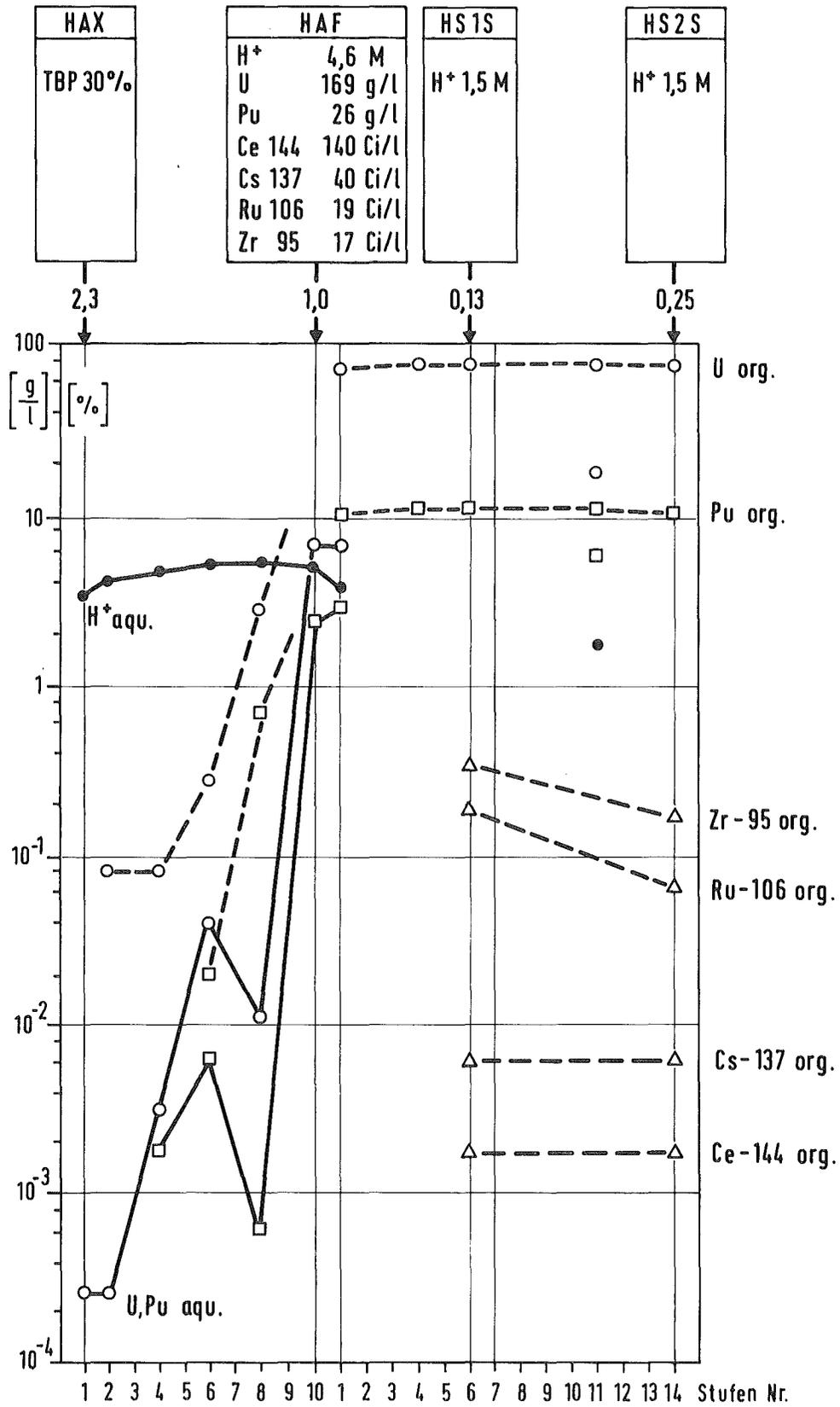


Abb. 2 Fließschema u. Konzentrationsprofile beim Exp. mit Brennstoff 203

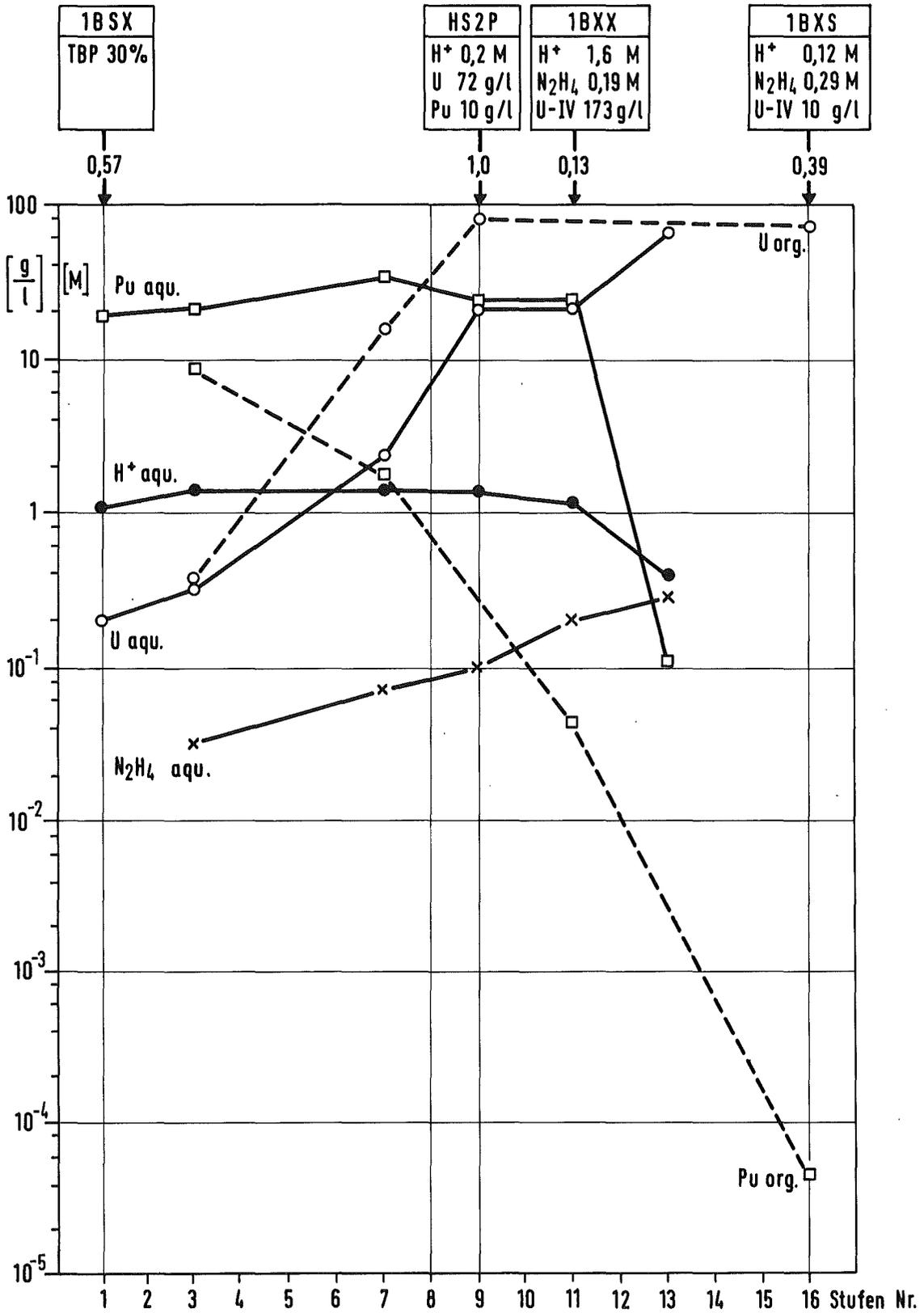


Abb.3 Fließschema u. Konzentrationsprofile beim Exp. mit Brennstoff 203



CHEMISCHE UND RADIOLYTISCHE SOLVENTZERSETZUNG IM PUREX-PROZESS

L. Stieglitz, R. Becker

Kernforschungszentrum Karlsruhe

1. Einleitung

Die extraktive Gewinnung der Wertstoffe Uran und Plutonium im Purex erfolgt bekanntlich anhand von reversiblen chemischen Reaktionen, nämlich der Bildung der Komplexe von Uran und Plutonium mit TBP bei der Extraktion, und der Zerlegung der Komplexe bei der Rückextraktion. Neben diesen reversiblen Vorgängen laufen im Prozess jedoch eine Reihe von chemischen Reaktionen ab, die eine irreversible Veränderung der organischen Phase bewirken. Die entstehenden Zersetzungsprodukte des TBP und des Verdünnungsmittels können eine Reihe verfahren- und sicherheitstechnische Auswirkungen auf den Prozeß haben. In Abb.1 sind eine Reihe von Effekten aufgeführt, die beobachtet wurden bzw. noch Gegenstand von Untersuchungen sind.

Die wichtigsten Auswirkungen sind Verluste von Uran und vor allem von Plutonium infolge Bindung an Dibutylphosphorsäure, deren Komplexe schlecht aus der organischen Phase rückextrahiert werden. In ähnlicher Weise wird durch Extraktion und Rückhaltung von Spaltprodukten der Dekontaminationsfaktor, speziell für Zirkon und Ruthenium erniedrigt. Infolge der Bildung von grenzflächenaktiven Substanzen erfolgt eine Veränderung des Phasenverhaltens: Änderung von Entmischzeit, erhöhtes Entrainment, Emulsionsbildung und gegebenenfalls Änderung der Benetzbarkeit von Kolonnenböden ist die Folge. Radiolyseprodukte können weiterhin zur Bildung von Niederschlägen mit Wertstoffen und Spaltprodukten führen, mit der Konsequenz, daß vorallem bei Mixer-Settlern das hydrodynamische Verhalten gestört wird; gegebenenfalls muß durch das Vorhandensein von Niederschlägen mit erhöhter Radiolyse gerechnet werden.

Auswirkungen	Gegenmaßnahmen
verfahrenstechnisch	
— Verluste von Wertstoffen (Uran, Plutonium)	Optimierung von Fließbild
— Erniedrigung des Dekontaminationsfaktors für Zr, Nb, Ru	Auswahl von Extraktionsapparaten
— Veränderung des Phasenverhaltens flüssig-flüssig: Verlängerung der Entmischzeit Emulsionsbildung	Verkürzung der Kontaktzeit (Strahlendosis)
flüssig-fest: Änderung der Benetzbarkeit (bei Kolonnen)	Reinigung des Extraktionsmittels
— Änderung der Wertigkeit (Uran, Plutonium)	
— Änderung der Extraktionskinetik (Stoffübergang)	
— Bildung von Niederschlägen (CRUD) (Störung des hydrodynamischen Verhaltens) (Erhöhte Radiolyse)	
sicherheitstechnisch	
— Bildung von brennbaren Radiolysegasen (H ₂ , C ₁ -C ₄)	Abgasbehandlung Auslegung der Anlagen
— Bildung von „Red-Oil“	Kontrolle der Produktströme Einsatz von Reinigungsverfahren Begrenzung von Temperaturen

Abb.1: Auswirkungen von Radiolyseprodukten auf den Purex-Prozess

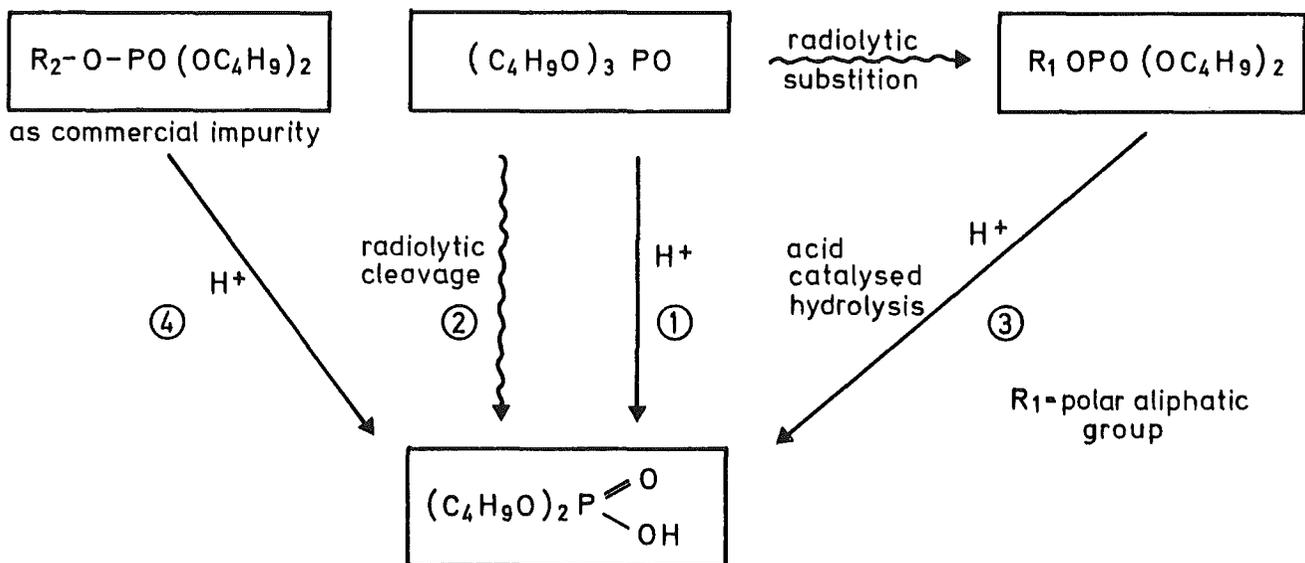


Abb.2: Bildungsmöglichkeiten von Dibutylphosphat

Den hauptsächlichlichen Auswirkungen kann durch eine Reihe bewährter Gegenmaßnahmen begegnet werden

- durch Auswahl von Extraktionsapparaten kann die Kontaktzeit und damit die Strahlendosis reduziert werden
- durch Optimierung des Fließbildes werden Wertstoffverluste niedrig gehalten
- durch Waschverfahren lassen sich Zersetzungprodukte aus dem Solvent entfernen und ihre Auswirkungen so auf temporäre Effekte reduzieren.

Speziell im Zusammenhang mit der Wiederaufarbeitung von Schnellbrüterbrennelementen mit hohem Abbrand und kurzen Kühlzeiten ist mit erhöhter Dosisleistung zu rechnen, so daß der Radiolyse des Solvents und den damit verbundenen Fragestellungen besondere Bedeutung zukommt. Zur Beurteilung dieser Problematik müssen folgende Fragekreise untersucht werden

- a) Ermittlung prozeßrelevanter Zersetzungsprodukte und deren Bildungsraten unter realistischen Prozeßbedingungen
- b) Abschätzung der zu erwartenden Dosisleistungen und der Strahlendosen

2. Organische Zersetzungsprodukte des Solvents

Infolge der Bedeutung der chemischen und radiolytischen Zersetzungsprodukte wurde seit den fünfziger Jahren die Bildung der Zersetzungsprodukte studiert, wobei erst der Fortschritt der analytischen Chemie der letzten zehn Jahre belastbare Zahlen liefern konnte.

2.1 Zersetzung des Tributylphosphates

Hauptprodukt des chemischen und radiolytischen Abbaus des TBP ist Dibutylphosphorsäure (HDBP), (Abb.2), das sich weiter zu Monobutylphosphat und Phosphorsäure abbauen kann /1/. Im ersten Extraktionszyklus des Purex-Prozesses überwiegt die radiolytische Bildung. Infolge der komplexen Zusammenhänge ist in realistischen Systemen, d.h. bei Anwesenheit von Sauerstoff, Salpetersäure, Wasser und Schwermetallen, eine Aufklärung der verschiedenen strahlenchemischen Einzelprozessen nicht

möglich. Unsere Untersuchungen befaßten sich deshalb weitgehend damit realistische Bildungsrate zu ermitteln unter Bedingungen, wie sie bei der Wiederaufarbeitung vorliegen, d.h. Anwesenheit von organischer und wässriger Phase, Salpetersäurekonzentrationen von 0.5 bis 3 M. Für 30 Vol-% TBP n-Alkan bei Anwesenheit wässriger Phasen wurden eine Bildungsrate von 80 mg HDBP/Wh ermittelt, ein Einfluß der Salpetersäurekonzentration im Bereich von 0.5 bis 3 M/l wurde nicht festgestellt. Bei gleichzeitiger Anwesenheit von Uran (120 g/l) erniedrigt sich der Wert auf ca. 70 mg HDBP/Wh. Monobutylphosphat und Phosphorsäure liegen mit ihren Bildungsrate um eine Größenordnung niedriger (2 mg H₂MPB/Wh; 6 mg H₃PO₄/Wh)

Ohne Einfluß der Strahlung, d.h. ausschließlich aufgrund von Hydrolyse bilden sich im gleichen System bei Zimmertemperatur 0.3 mg/lh HDBP, bei 50° C ca. 4 mg/lh und bei 75° C ca. 40 mg/lh. Für moderate Temperaturen, wie sie im Purex-Prozess vorliegen ist damit die Radiolyse die Hauptursache der TBP-Zersetzung.

2.2 Zersetzungsprodukte des Verdünnungsmittels

Auch das Verdünnungsmittel, meist ein Alkangemisch von C₁₀ bis C₁₃ erfährt irreversible Veränderungen (Abb.3). Radikale des Verdünnungsmittels können miteinander rekombinieren und Alkane mit höherem Molekulargewicht aufbauen, so wurden z.B. Kohlenwasserstoffe zwischen C₂₄ und C₃₆ identifiziert.

Alkyllradikale reagieren auch mit anwesendem Wasser, Sauerstoff, Salpetersäure und nitrosen Gasen zu Abbau und Substitutionsprodukte wie Ketonen, Carbonsäuren, Nitroalkane, Nitrat- und Nitrateestern, die sich in sekundäre Produkte umwandeln können. Alkyllradikale können ferner mit TBP-Radikalen rekombinieren und langkettige Phosphate bilden, die radiolytisch oder hydrolytisch zu sauren Produkten abgebaut werden. Diese Verbindungen, von denen verschiedene Homologe und Isomere vorliegen können, sind verantwortlich für die Retention von Zirkon und damit für die Erniedrigung der Dekontaminationsfaktoren. Zusammen mit Carbonsäuren stellen sie grenzflächenaktive Substanzen dar.

Schließlich können auch TBP-Radikale miteinander rekombinieren und Oligomere des TBP aufbauen, die bis zu einem Molekulargewicht von 1058 entsprechend vier TBP-Einheiten identifiziert wurden. Diese Oligomere können ebenfalls durch Dealkylierung saure Phosphorester bilden, die zur Zirkonretention beitragen können.

Alle diese Substanzklassen lassen sich durch bisherige entwickelte Reinigungsverfahren wie z.B. durch eine Wäsche mit alkalischen Lösungen (Na_2CO_3) nicht entfernen, sie reichern sich damit im Solvent an und begrenzen schließlich die Lebensdauer des Lösungsmittels.

Aufgrund der Vielfalt der Zersetzungsprodukte vorallem des Verdünnungsmittels ist eine analytische Erfassung und quantitative Bestimmung der Einzelspezies aufwendig und schwierig. Als Einzelverbindungen werden vorallem die Abbauprodukte des TBP wie Mono-, Dibutylphosphat und Phosphorsäure durch Gaschromatographie und Ionenchromatographie bis zu einer Nachweisgrenze von 2-5 mg/l erfaßt.

Eine detaillierte Analyse der Zersetzungsprodukte des Verdünnungsmittels ist dagegen vom Aufwand her nicht notwendig. Vielmehr wird versucht mit Hilfe einfacher Meßverfahren summarisch die einzelnen, relevanten Substanzklassen zu erfassen, ihre Bildungsraten zu ermitteln, sowie durch physikalisch-chemische Meßgrößen wie Grenzflächenspannung Veränderungen des Solvents zu beschreiben. Die hauptsächlich angewandten Verfahren sind in Abb.4 zusammengestellt:

Durch Infrarotspektrometrie lassen sich Gesamtkonzentrationen an aliphatischen Carbonylverbindungen abschätzen. Bei Einsatz des technischen Gemisches $\text{C}_{10}\text{-C}_{13}$ als Verdünnungsmittel werden ca. $1 \cdot 10^{-3}$ Mol pro Wh gebildet. Über die Messung der elektrolytischen Leitfähigkeit können organische Anionen (als Natriumsalze) bestimmt werden. Durch eine Vorbehandlung der Solventproben mit wässrigen Lösungen abgestufter Basizität kann meßtechnisch eine Differenzierung zwischen langkettigen sauren Phosphatester, Carbonsäuren und Enolen erfolgen. Die ermittelten Bildungsraten dieser Substanzklassen sind $3.6 \cdot 10^{-6}$, $2 \cdot 10^{-5}$ und $1 \cdot 10^{-4}$ M/Wh. Schließlich kann durch Polarographie auch die Bildung von Nitroalkanen und Alkylnitraten verfolgt werden.

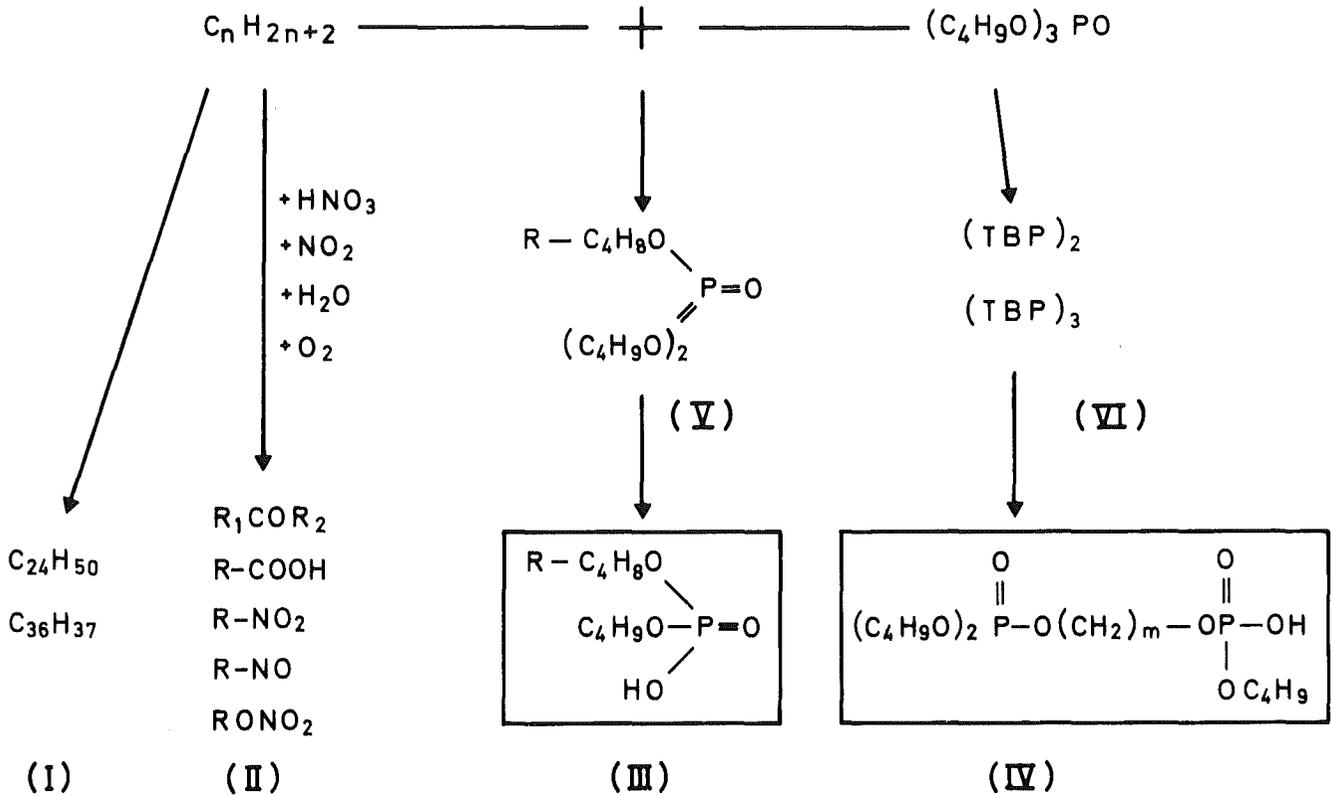


Abb.3: Zersetzungsprodukte des Verdünnungsmittels

Verbindungsclassse	Bildungsrate M/Wh	Meßverfahren
Karbonylverbindungen (gesamt)	$1,1 \times 10^{-3}$	IR
Karbonsäuren R-CO(OH)	$1 \times 10^{-5} - 2,2 \times 10^{-5}$	el. Leitfähigkeit
Enole	$1,1 \times 10^{-4}$	el. Leitfähigkeit
langkettige saure Phosphatester	$3,6 \times 10^{-6}$	el. Leitfähigkeit
Nitroalkane R-NO ₂	$8,9 \times 10^{-5}$ 3×10^{-5}	Polarographie IR
Alkylnitrate R-O NO ₂	$2,76 \times 10^{-4}$ $2,1 \times 10^{-4}$	Polarographie IR

Abb.4: Bildung von Zersetzungsprodukten im Purex-System

Die Bildungsraten der erwähnten Substanzklassen hängen in starkem Maße von der Zusammensetzung des Solvents ab, d.h. es findet eine starke Wechselwirkung zwischen Verunreinigungen des Verdünnungsmittels und radiolytisch erzeugten Radikalen statt. So kann die Strahlenausbeute (G-Wert) von Nitroverbindungen je nach eingesetztem Verdünnungsmittel um den Faktor 10 variieren, die von Nitratverbindungen um den Faktor 7 und von Ketonen um den Faktor 40.

Auch die Bildung des Dibutylphosphates wird durch Art und Reinheit des Verdünnungsmittels beeinflusst und variiert zwischen G-Werten von 0.40 bis 3.63. Grund für diesen Effekt ist die Tatsache, daß Energieübertragungsprozesse von Verdünnungsmittel zum TBP und zurück stattfinden und durch geringe Konzentrationen an Verunreinigungen aromatischer Kohlenwasserstoffe beeinflusst werden. Odourless Kerosene reagiert als Energiesenke, es nimmt teilweise Energie von angeregten TBP-Molekülen auf, was schließlich in geringerer Bildung von HDBP (G-Wert 0.40) resultiert. HPT, ein hydriertes Propylentetramer, erweist sich als sehr stabil, es überträgt als angeregtes Molekül Energie auf das TBP und führt so zu starker HDBP-Bildung (G-Wert 3,63).

Letztlich hängt die Wahl des geeigneten Verdünnungsmittels von der Philosophie des Verfahrenstechnikers ab. Will man möglichst wenig Dibutylphosphat, so wählt man Verdünner mit niederem G-Wert für HDBP, d.h. solche mit einem gewissen Anteil an aromatischen Verunreinigungen. Man muß jedoch eine erhöhte Bildung von Zersetzungsprodukten des Verdünnungsmittels und damit eine langfristige Verschlechterung des Lösungsmittels in Kauf nehmen. Will man diese langfristige Verschlechterung gering halten, so wählt man Verdünner mit hohem G-Wert für HDBP, opfert sozusagen das TBP zugunsten des Verdünnungsmittels. Hierbei besteht jedoch die Gefahr, daß zu hohe HDBP-Konzentrationen zu Niederschlagsbildung und damit zu Störungen des Prozesses führen.

Kühlzeit	PWR		SNR 300
	3 a	7 a	220 d
Aktivität Ci/T _{SM} Ci/l	7,8 · 10 ⁵ 186	3,7 · 10 ⁵ 88	4,7 · 10 ⁶ 1120
Dosisleistung W/t	2,9 · 10 ³	1,1 · 10 ³	4,7 · 10 ⁶ FP. 1,2 · 10 ³ Akt.
W/l	0,7	0,27	4,5 FP. 0,3 Akt.

PWR: 33 000 MWd/t , SNR 300: Core + Ax. Blanket 31 000 MWd/t
Brennstofflösung: 1 M U + Pu (238 g U + Pu/l) = 4,2 l/kg SM

Abb.5: Spaltproduktkonzentrationen und Dosisleistungen von Brennstofflösungen

Fuel	Extractor	Radiation Dose Wh/l	HDBP Calculated mg/l
CFR (43500 MWD/t) 50 d cooling	<u>20 vol-% TBP</u>		
	Mixer-Settler	2.84	100 (276)
	Pulsed Column (Ø 15 cm)	0.19	7.6 (19)
	centrifugal contactor	0.06	2.5 (6.2)
	<u>30 vol.-% TBP</u>		
	Pulsed Column (Ø 15 cm)	0.31	14 (30)

Abb.6: Strahlendosis des Solvents bei der Wiederaufarbeitung von SBR-Brennelementen

3. Abschätzung von Dosisleistung und Strahlendosis

Mit welchen Dosisleistungen hat man nun bei der Wiederaufarbeitung von Brennelementen aus Schnellbrütern zu rechnen ? Abschätzungen der Dosisleistungen einer repräsentativen Feedlösung sind in Abb.5 gegeben. Ausgehend von einem Spaltproduktinventar, das eine thermische Leistung von 1-3 kW pro Tonne Schwermetall bringt, kommen wir für Druckwasserreaktoren bei 3 Jahren Kühlzeit zu einer Dosisleistung von 0.7 W/l, bezogen auf eine Brennstofflösung von 238 g/l Schwermetall. Bei einer Kühlzeit von 7 Jahren erniedrigt sich diese Dosisleistung auf 0.27 W/l. /2/.

Demgegenüber wird für die Feed-Lösung eines FBR-Brennelements des SNR-300 mit einem mittleren Abbrand von 31 000 MWd/t und 220 Tagen Kühlzeit eine Dosisleistung von 5 W/l errechnet, wobei der Anteil der Spaltprodukte bei 4.5 W/l und der der Aktiniden bei 0.3 W/l liegt. Ausgehend von der relativ gut zu ermittelnden Dosisleistung der Feedlösung kann man versuchen, die im ersten Extraktionszyklus absorbierte Strahlendosis zu berechnen.

Eine Abschätzung der Absorption in Pulskolonnen ist mit plausiblen Annahmen über anteilige Absorption von β , γ Strahlung in organischer und wässriger Phase, über den Einfluß von Kolonnengeometrie, Phasenverhältnis und Durchsatz durchführbar. Ebenso sind die Verhältnisse bei Zentrifugalextraktoren berechenbar. Weit weniger durchsichtig sind die Verhältnisse dagegen bei Mischabsetzern, wo die Vorgänge in der Mischkammer und Absetzkammer nur annähernd zu betrachten und die Rolle der Trennschicht nur schwer in Zahlen zu fassen ist.

Zur Abschätzung der Strahlendosen wurde vorallem von Naylor und Brown ein Konzept erstellt /3/. In Abb.6 sind die Ergebnisse für die verschiedenen Extraktionsapparate zusammengefaßt.

Ausgehend von einem Brennstoff des Civil Fast Reaktors (FR) mit einem mittleren Abbrand von 43 500 MWd/t und extrem kurzer Kühlzeit von 50 Tagen wurde die Dosisbelastung des Solvents pro Durchgang berechnet und die zu erwartende Konzentration an Dibutylphosphat abgeschätzt. Für die Anwendung eines Mischabsetzers errechnet sich eine Dosis von 2.8 Wh/l;

mit dieser Dosis entstehen ca. 276 mg/l HDBP. Hier sind Störungen durch Niederschlagsbildung zu erwarten. Beim Übergang zu einer Pulskolonne mit einem Durchmesser von 15 cm erniedrigt sich die Dosis aufgrund der kürzeren Kontaktzeit und der anderen Geometrie des Extraktionsapparates auf 0.10 Wh/l, d.h. um den Faktor 15. Hierbei werden nur mehr ca. 20 mg/l HDBP erwartet. Beim Übergang zum Zentrifugalextraktor wird die Dosis nochmals um den Faktor 3 erniedrigt, und die gebildete Dibutylphosphatkonzentration damit vernachlässigbar klein.

Aus diesen Abschätzungen geht hervor, daß Mischabsetzer zur Wiederaufarbeitung kurz gekühlter SBR-Brennelemente weniger geeignet, Pulskolonnen und Zentrifugalextraktoren dagegen als optimal zu sehen sind. Aufschlußreich sind in diesem Zusammenhang Ergebnisse von Richardson, der die Strahlenexposition im ersten Zyklus durch eine Ce-144 Lösung simulierte /4/. Es wurde ein vielstufiges System von Miniatur-Zentrifugalextraktoren verwendet, die Dosisleistung war 0.9 bis 9.3 W/l, entsprechend Verhältnissen, wie sie bei Schnellbrüterbrennstoffen zu erwarten sind. Es zeigte sich, daß bei einem Dosisbereich für das Solvent von 0.02 bis 1.98 Wh/l die Dekontaminationsfaktoren für Zirkon im IAP von $7.8 \cdot 10^5$ auf $6 \cdot 10^4$ zurückgingen. Die Retention von Uran in Solvent stieg von $1.3 \cdot 10^{-7}$ auf $5 \cdot 10^{-5}$ Mol/l die von Plutonium von $2.6 \cdot 10^{-9}$ auf $1.9 \cdot 10^{-7}$ Mol/l. Die Verluste von Uran stimmten mit den Werten überein, die aus den HDBP-Konzentrationen zu berechnen waren.

Die Eignung des Purex-Prozesses zur SBR-Wiederaufarbeitung wurde durch die KNK II-Kampagne an der Milli-Anlage des Instituts für Heiße Chemie erfolgreich demonstriert. Obwohl hier die weniger geeigneten Mischabsetzer zum Einsatz kamen wurden Störungen aufgrund radiolytischer Prozesse nicht beobachtet. Aufgrund der theoretischen Berechnungen im INR /5/ und dem gemessenen Spaltproduktinventar /6/ wurde bei einer Kühlzeit von 10 Monaten und einem mittleren Abbrand von 43 000 Mwd/t (Core + axiales Blanket) eine Strahlendosisleistung von 2.5 W/l für β , γ und 0.07 W/l für α -Strahler errechnet. Unter Berücksichtigung der Geometrie des Milli-Mischabsetzers wurde für den 1. Zyklus eine Dosis von ca. 0.5 Wh/l abschätzen läßt. Die Konzentrationen relevanter Degradationsprodukte sind in Abb.7 für Proben aus den einzelnen Zyklen aufgeführt. Die Werte für HDBP liegen im ersten Zyklus in dem oben angegebenen Bereich. Die erhöhten Werte bei der U/Pu-Trennung und Pu-Reinigung sind teilweise durch die dort erhöhten Temperaturen und die

Probenherkunft	Konzentration Zersetzungsprodukte				
	HDBP	lipophile Phosphate	Carbonsäuren	Enole	R - No ₂
1AS-08	24	$2 \cdot 10^{-5}$ M/l	$5 \cdot 10^{-5}$ M/l	$6 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-4}$
1 C-016	24	$8 \cdot 10^{-6}$	$5 \cdot 10^{-5}$	$1.5 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-4}$
1AS-08	55	$< 10^{-5}$	$8 \cdot 10^{-5}$	$< 10^{-5}$	$2 \cdot 10^{-4}$
1 C-016	54	$< 10^{-5}$	$4 \cdot 10^{-5}$	$< 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-4}$
1 C-016	185	$5 \cdot 10^{-5}$	$3 \cdot 10^{-4}$	$< 10^{-5}$	$5 \cdot 10^{-4}$
2 A-016	199	$4 \cdot 10^{-5}$	$2 \cdot 10^{-4}$	$< 10^{-5}$	$5 \cdot 10^{-4}$
2 B-016	155	$3 \cdot 10^{-5}$	$1.5 \cdot 10^{-4}$	$1.2 \cdot 10^{-4}$	$3 \cdot 10^{-4}$
2 A-016	33	$1 \cdot 10^{-5}$	$6 \cdot 10^{-5}$	$< 10^{-5}$	$1.5 \cdot 10^{-4}$
2 C-016	17	$< 10^{-5}$	$7 \cdot 10^{-5}$	$< 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-4}$

Feedaktivität 2,50 W/l β, γ
0,07 W/l α

Strahlendosis 0,35 Wh/l
1. Zyklus

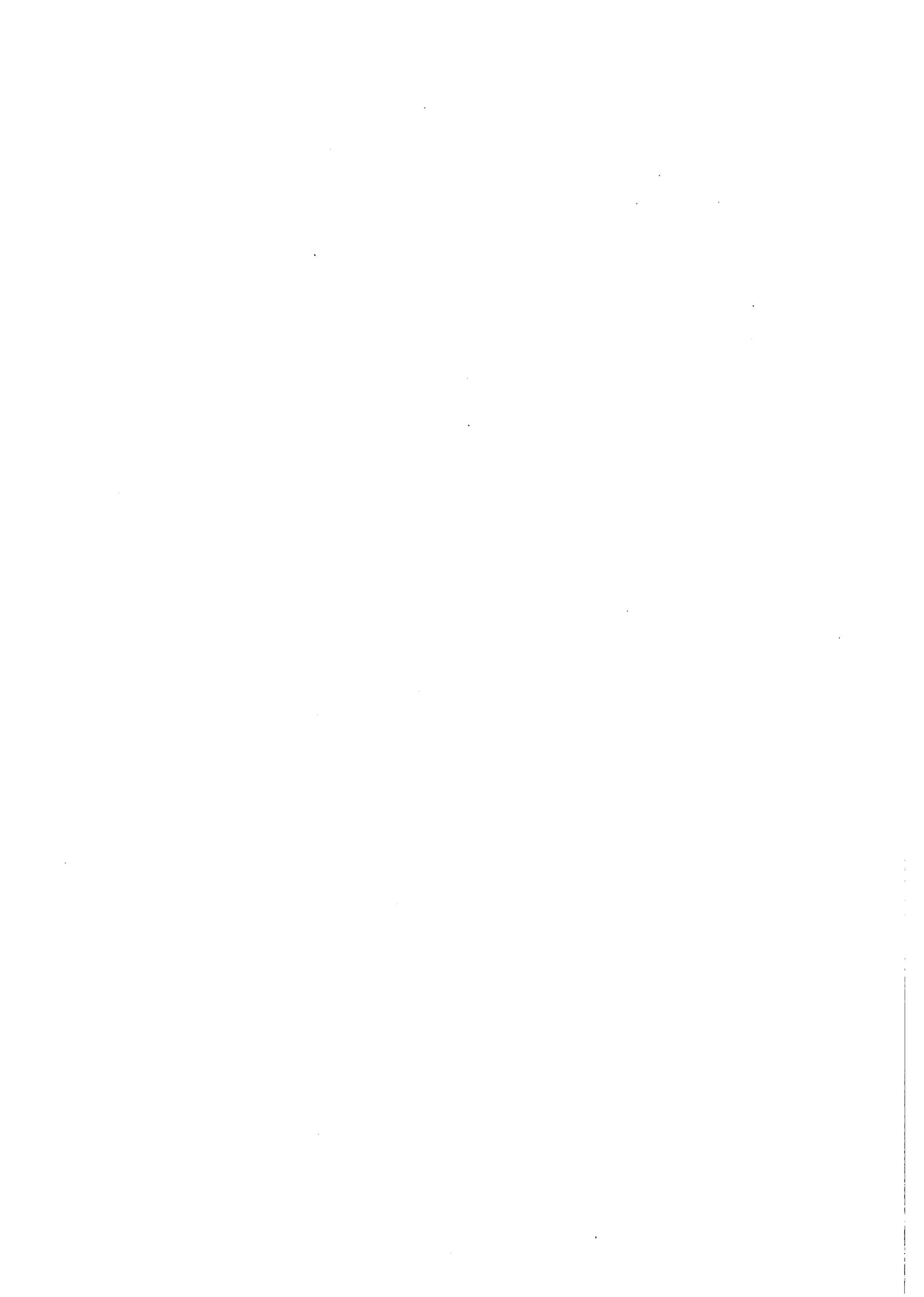
Abb.7: Bildung von Zersetzungsprodukten des Solvents bei der KNK-II-Kampagne in der MILLI

hohen Konzentrationen an vierwertigen Schwermetallen zu erklären. Die Konzentrationen an sonstigen Zersetzungsprodukten liegen knapp oberhalb der Nachweisgrenzen und erbringen keine prozeßstörenden Wirkungen.

Generell zeigen damit Laborversuche und Technikumsbetrieb daß der Einfluß der Radiolyse auf den Purex-Prozeß verfahrenstechnisch beherrschbar ist. Wenig belastbares Material liegt allerdings vor über Langzeiteffekte am Solvent wenn im Interesse einer Minimierung des organischen Abfalls eine weitgehende Rezyklierung der organischen Phase angestrebt wird. Es ist abzuschätzen, daß bei wiederholter Rezyklierung die Strahlendosis des Solvents sich einem Gleichgewichtswert von 40-50 Wh/1 nähert. Die dann auftretenden Effekte sind gegenwärtig noch Gegenstand von F+E-Arbeiten.

Literatur

- /1/ L.Stieglitz, R. Becker, in Nukleare Entsorgung Bd.2, p.333-359, 1982, Verlag Chemie, Weinheim
- /2/ H. Haug, persönliche Mitteilung
- /3/ Naylor, Brown, persönliche Mitteilung
- /4/ G.L. Richardson, HEDL-TME-73-51 Report June 1973
- /5/ H.W. Wiese, persönliche Mitteilung
- /6/ P. Dressler, W. Habicht, D. Ertel, persönliche Mitteilung



MILLI II
KONZEPT EINER PILOTANLAGE ZUR WIEDERAUFARBEITUNG VON
SCHNELLBRÜTER-BRENNELEMENTEN

G. Koch

Kernforschungszentrum Karlsruhe

Zusammenfassung

Mit der MILLI-II-Studie wurde das Konzept einer Pilotanlage zur Wiederaufarbeitung von Schnellbrüter-Brennelementen erarbeitet. Ziel ist die Schließung des Schnellbrüterbrennstoffkreislaufs im halbtechnischen Maßstab, die Gewinnung von Betriebserfahrungen für Großanlagen, die technische Erprobung neuentwickelter Verfahrensweisen zur ökonomischen und sicherheitstechnischen Optimierung der Wiederaufarbeitung von Brennelementen fortgeschrittener Reaktoren und die Bereitstellung eines flexiblen Testbetts für künftige Entwicklungen. Entsprechend dieser Aufgabenstellung sieht das Konzept insbesondere die Wiederaufarbeitung von Brennelementen aus SNR 300 und KNK II nach einer Mindestkühlzeit von 180 Tagen vor, darüberhinaus können Brennelemente vom Superphenix-Typ, von Leichtwasserreaktoren heutiger Bauweise und ggf. von fortgeschrittenen Druckwasserreaktoren aufgearbeitet werden. Mit einem Auslegungsdurchsatz von 50 kg U+Pu pro Tag ist die Anlage zur vollständigen Schließung des Brennstoffkreislaufs von SNR 300 und KNK II geeignet.

Einleitung

Der schnelle Brutreaktor (SBR) hat - als einziges technisch verfügbares System - das Potential, die Versorgung einer energiehungrigen und über-völkerten Welt mit elektrischer Energie für Jahrtausende umwelt- und ressourcenschonend zu decken. Die Grund liegt in der nahezu verlustfreien Verwertung des Energierohrstoffs Uran im Schnellen Brüter (Abb. 1). Während ein Leichtwasserreaktor (LWR) zur Erzeugung von einem Gigawatt-jahr elektrischen Stroms 205 t Natururan (ohne Wiederaufarbeitung und Energieträgerrecycling) bzw. 120 t Natururan (mit Wiederaufarbeitung und Energieträgerrecycling) verbraucht, von denen im ersten Fall 203 Tonnen ungenutzt weggeworfen werden und im zweiten Fall 118 Tonnen zumindest im LWR nicht mehr nutzbar sind, benötigt der SBR zur Erzeugung der gleichen Energiemenge nur rund 1,5 t Natururan (1). Mit anderen Worten, der SBR weist im Vergleich zum LWR mit "alternativer" Entsorgung einen um den Faktor mehr als 100 verbesserten Ausnutzungsgrad des Urans auf. Da nach Strategierechnungen von Beckurts et al. (2) die derzeit einigermaßen bekannten Uranvorräte, 5 Millionen Tonnen der Kategorien "hinreichend gesicherte" und "geschätzte zusätzliche" Vorräte mit Erzeugungskosten unter 130 Dollar pro Kilogramm Uran für die westliche Welt, selbst bei verhältnismäßig moderatem Kernenergieeinsatz mit LWRs ohne Wiederaufarbeitung noch im ersten Quartal des nächsten Jahrhunderts aufgebraucht sein würden, ergibt sich unter der Voraussetzung, daß auch für künftige Generationen eine gesicherte Energieversorgung offengehalten werden soll, die Notwendigkeit des möglichst frühzeitigen Übergangs zum SBR. Diese Zusammenhänge rechtfertigen und bedingen die weltweit in allen wichtigen Industrienationen eingeleiteten Entwicklungsarbeiten, die zum Ziel haben, den SBR und seinen Brennstoffkreislauf technisch verfügbar, wirtschaftlich konkurrenzfähig und sicherheitstechnisch vertretbar zu machen.

Entwicklungsstand

In Deutschland ist mit der KNK-II ein 20 MWe-Schnellbrüter-Versuchskraftwerk seit 1977 erfolgreich in Betrieb und mit dem SNR-300 ein 300 MWe-Demonstrationskraftwerk im Bau. Auch auf dem Sektor Brennelementfertigung ist mit der ALKEM-Anlage (Kapazität 10 jato SBR-Brennstoff) eine Demo-Anlage entsprechender Kapazität vorhanden.

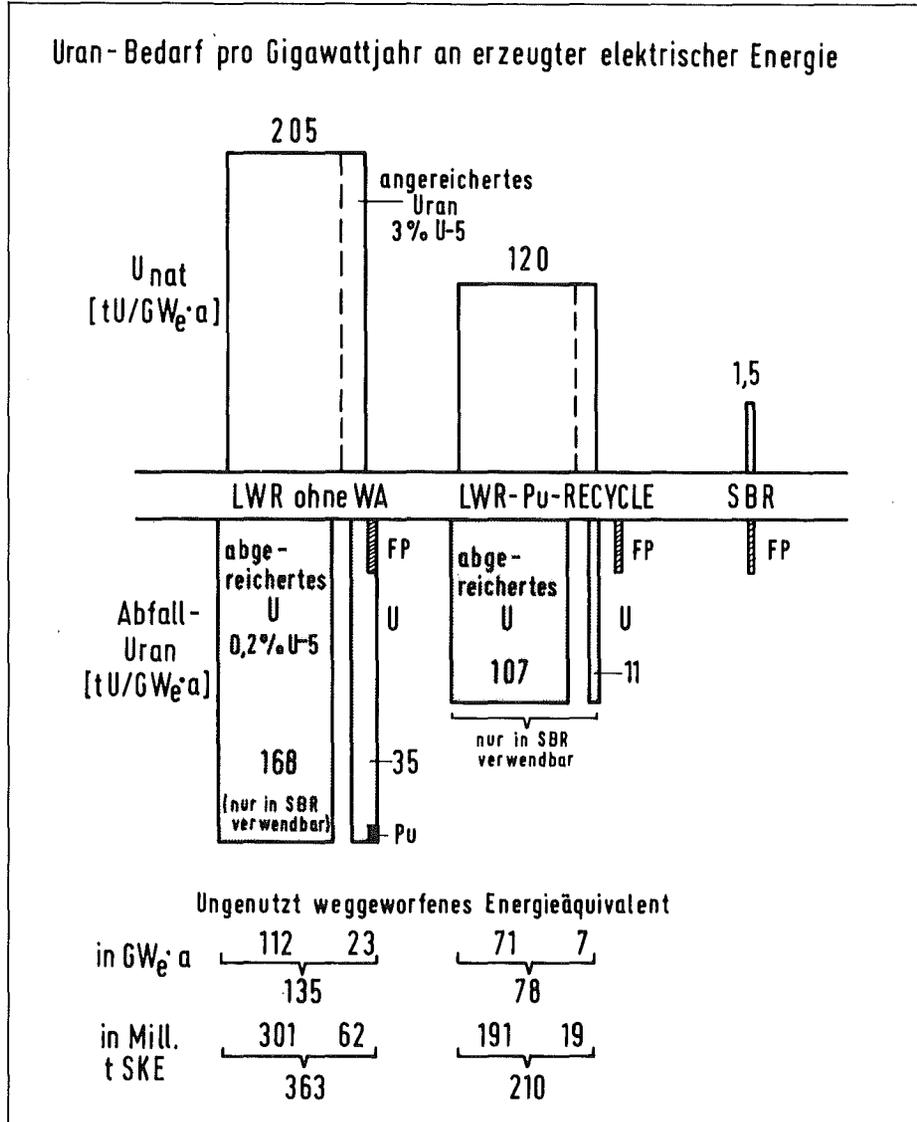


Abb.1: Uranbedarf und Abfallmengen für 1 Gigawatt erzeugter elektrischer Energie mit (a) LWR ohne Wiederaufarbeitung, (b) LWR mit Wiederaufarbeitung, und (c) SBR. Nach Haug (1).

Für den Erfolg des Schnellen Brüters ist die Energieträger-Rezyklierung durch Wiederaufarbeitung der Brenn- und Brutelemente entscheidend. Sie hat den Entwicklungsstand einer Demo-Anlage noch nicht erreicht. Zwar gibt es verschiedene Experimentiereinrichtungen des Kernforschungszentrums Karlsruhe, diese können aber nicht im Verbund und nicht im Dauerbetrieb arbeiten und weisen auch von ihrer Ausrüstung und ihrem Durchsatz her keinen Demo-Charakter auf. Die Erfahrungen mit diesen Einrichtungen sind auf dieser Tagung (3-5) oder an anderer Stelle (6) berichtet worden.

Im internationalen Vergleich ist festzustellen, daß auf dem Gebiet der Schnellbrüter-Wiederaufarbeitung eine Reihe konkurrierender Industrieländer einen zum Teil erheblichen Vorsprung gegenüber der Bundesrepublik aufweisen (7). Dies gilt besonders für Großbritannien und Frankreich, wo je eine Demo-SBR-Wiederaufarbeitungsanlage in Betrieb (Dounraey) bzw. vor der Inbetriebnahme (Marcoule) stehen, aber auch für Japan und vermutlich die UdSSR. Die Bundesrepublik wird ihre Anstrengungen erhöhen müssen, wenn sie nicht in einen technologischen Rückstand gegenüber diesen Ländern kommen will.

Zielsetzung

Die MILLI-II-Konzeptstudie hatte das Ziel, die Planungsgrundlage für eine Wiederaufarbeitungs-Demonstrationsanlage für Schnellbrüter-Brennelemente zu schaffen. Eine weitere Aufgabe der Studie war es, die Stoßrichtungen für ein brüterbezogenes Wiederaufarbeitungs-F+E-Programm aufzuzeigen und entsprechende Aufgabenstellungen zu identifizieren.

Das in der Studie entwickelte Anlagenkonzept sollte besonders die folgenden Zielsetzungen erfüllen:

- Die Schließung des Schnellbrüter-Brennstoffkreislaufs ist nach kurzer Kühlzeit der Brennelemente im Routinebetrieb zu demonstrieren.
- Für die Auslegung und den Betrieb einer künftigen Großanlage sind eigene Betriebserfahrungen mit einer Pilotanlage unerlässlich.
- Die technische Reife neuentwickelter Verfahren zur Erhöhung der Anlagenverfügbarkeit, zur Verminderung der radioaktiven Abfälle, zur

weiteren Herabsetzung der Strahlenbelastung der Umgebung und des Anlagenpersonals, zur Verbesserung der Spaltmaterialüberwachung, und insgesamt zur Vereinfachung des Verfahrens und damit zur Herabsetzung der Wiederaufarbeitungskosten ist im betriebsrelevanten Maßstab zu demonstrieren.

- Abläufe von nicht bestimmungsgemäßen Betriebsphasen sind unter Betriebsbedingungen zu untersuchen und die Wirkung von Gegenmaßnahmen zu demonstrieren.
- Die Verarbeitung von Brennelementen künftiger Schnellbrüter-Großkraftwerke (z.B. vom Superphenix-Typ) und anderer fortgeschrittener Reaktoren (z.B. Fortgeschrittene Druckwasserreaktoren) sowie die Wiederaufarbeitung der bereits vorhandenen LWR-MOX-Testbrennelemente muß möglich sein.
- Die nachträgliche Umrüstung der Anlage auf neue Verfahrensweisen, wie sie aus künftigen F+E-Arbeiten hervorgehen können, muß gewährleistet sein.

Diese Anforderungen verlangten ein Anlagenkonzept, das einerseits auf der gesicherten Basis ausgereifter und verfügbarer Technologien beruht und andererseits eine hohe Flexibilität hinsichtlich Verfahren und Ausrüstung garantiert.

Grunddaten

Für die Anlagenauslegung wurden folgende Referenzwerte festgelegt:

Brennelement:	SNR-300
Abbrand:	150 000 MWd/t
Kühlzeit:	mindestens 6 Monate
Durchsatz:	50 kg U+Pu pro Tag

Mit der Annahme eines Abbrandes von 150 000 MWd/t wird die Möglichkeit offengehalten, künftige Test-Brennelemente mit einem gegenüber heutigen Standardwerten deutlich erhöhten Abbrand verarbeiten zu können. Die Mindeskühlzeit von 6 Monaten entspricht einem heute als praktikabel angesehenen Zielwert und stellt andererseits noch keine unververtretbaren

Anforderungen an die Auslegung des Abgassystems. Für die Festlegung des Nominaldurchsatzes waren zwei Bestimmungsgrößen entscheidend: Die Anwendung von Pulskolonnen im Extraktionsteil erfordert in Verbindung mit einem PUREX-typischen Prozeßfließschema einen apparatetechnisch bedingten Mindestdurchsatz in der Größenordnung von 2 kg Schwermetall (U+Pu) pro Stunde, entsprechend ca. 50 kg Schwermetall pro Tag. Diese Größe ist in Beziehung zu setzen zu den auf absehbare Zeit aus deutschen Schnellbrut-Reaktoren zu erwartenden Core-Entlademengen von rund 6,5 t Schwermetall pro Jahr (davon ca. 6 t/a aus dem SNR-300 und 0,5 t/a aus der KNK-II), was mit dem angegebenen Durchsatz einer nominellen Anlagen-Betriebszeit von 130 Tagen pro Jahr entspricht, einem auch für Dauerbetriebstests ausreichenden und vernünftigen Wert.

Verfahrenskonzept

Das Verfahrenskonzept (8) basiert auf der mechanischen Zerlegung und Zerkleinerung der Brennelemente im mechanischen Head-End und der anschließenden chemischen Abtrennung und Reinigung der Wertstoffe Plutonium und Uran mittels eines modifizierten PUREX-Verfahrens. Abbildung 2 zeigt ein stark vereinfachtes Blockschema.

Transport und Zwischenlagerung. Die Brennelemente werden am jeweiligen Reaktorstandort in einer Dampfwaschanlage von anhaftendem Natrium befreit und danach in luftgekühlten Transportbehältern zum Standort der Wiederaufarbeitungsanlage transportiert. Hier werden sie - unter Zuhilfenahme der MILLI-II-Einschleusezelle - in luftgekühlte Zwischenlagerbehälter umgeladen, die als betrieblicher Puffer dienen. Die Einzelheiten dieser Techniken sind in zwei anderen Vorträgen auf dieser Tagung eingehend dargelegt worden (9, 10).

Mechanisches Head-End. Die eigentliche Wiederaufarbeitung beginnt mit dem mechanischen Head-End (3, 10), dessen Grundschemata in Abb.3 wiedergegeben ist. Zur Übernahme eines Brennelementes (BE) aus einem Transport- oder Lagerbehälter wird dieser unter einer kombinierten Entlade/Einschleusezelle senkrecht angedockt, das Brennelement in die Zelle gezogen und in einer von sieben Lagerpositionen abgestellt. Zur

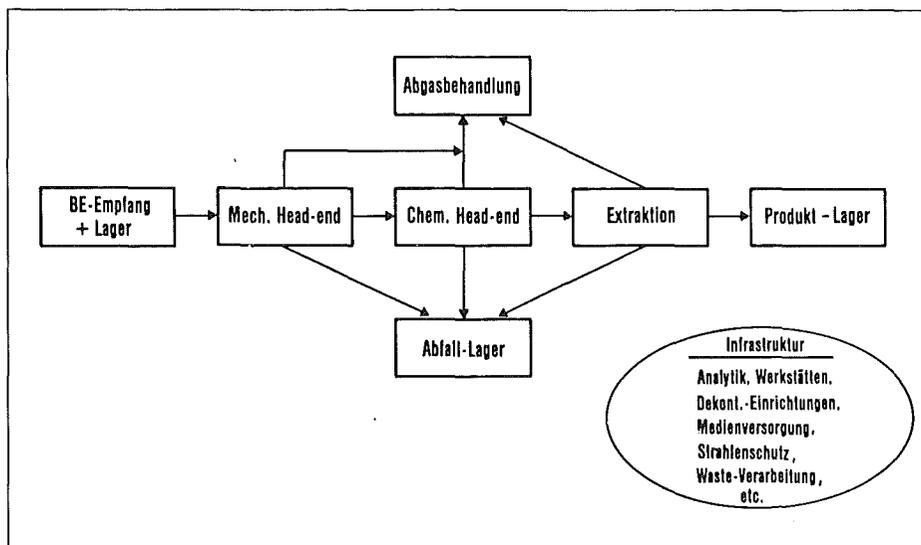


Abb.2: Blockschema MILLI-II

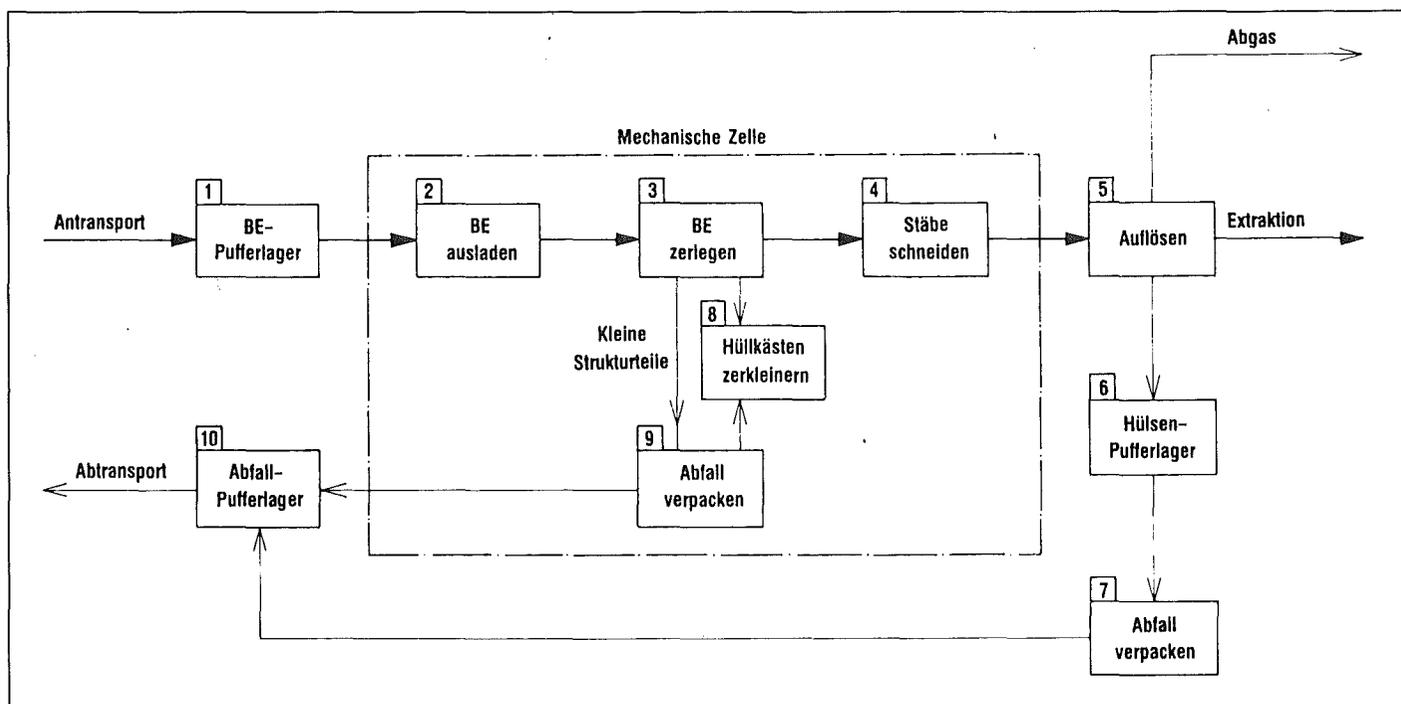


Abb.3: Mechanisches Head-End MILLI-II, Grundschemata

Überführung in die Zerlegezelle wird das Brennelement horizontal geneigt. Auf der Zerlegebank werden die BE-Endstücke mittels einer Bügelsäge abgetrennt, der BE-Kasten abgezogen, die Stabbefestigungen gelöst, die Brennstäbe herausgezogen und diese in einem Magazin zwischengespeichert. Sie werden anschließend in der Brennstabsschere in Abschnitte von etwa 5 cm Länge geschnitten und dem Auflöser zugeführt. Der Brennelement-Kasten wird auf derselben Werkbank in verpackungsgerechte Stücke zerschnitten und zusammen mit anderen Strukturmaterial-Teilen in ein Standard-400-Liter-Abfallfaß verpackt, einzementiert und in das Abfall-Pufferlager überführt.

Chemisches Head-End. Dieses dient zur Vorbereitung der Extraktions-Speiselösung; da in dieser Stufe der Hauptanteil der flüchtigen Spaltprodukte freigesetzt wird, trägt sie zugleich die Hauptlast der Abgasreinigung - vgl. das Grundschemata in Abb.4. Die in der Brennstabsschere geschnittenen Stababschnitte werden kontinuierlich in einen von zwei Auflösern mit einer Kapazität von 36 kg Schwermetall gefördert, die im zyklischen Wechselbetrieb arbeiten (siehe Abb.5). Der Brennstoff wird in siedender Salpetersäure aufgelöst und die Brennstofflösung abgezogen. Die im Auflöserkorb befindlichen ausgelaugten Hüllrohrabschnitte werden mit der nächsten Säurecharge nachgelöst, mit frischer Säure gewaschen, aus dem Auflöser gezogen, auf Spaltmaterial kontrolliert und zur Abfallbehandlung überführt. Ein Auflöserzyklus dauert nominell 24, mindestens 18 Stunden. Die Brennstofflösung wird in einen von zwei Reaktions-tanks überführt, auf ihren Restjodgehalt analysiert und, falls erforderlich, einer chemischen Nachbehandlung zur völligen Jodaustreibung unterzogen (Zusatz von inaktivem Natriumjodat, Einblasen von Stickoxid und Kochen unter Rückfluß) (8). Die Brennstofflösung wird nach Abkühlung in einer Klärzentrifuge geklärt und in einen von zwei Feed-Einstelltanks überführt.

Der in der Klärzentrifuge abgeschiedene Klärschlamm wird bei hinreichend niedrigem Spaltmaterialgehalt als Abfall weiterbehandelt. MOX-Brennelemente älterer Fertigung (ältere KNK II- und LWR-Rezyklierungselemente, SNR 300 Core 1) sind, wie Untersuchungen in der MILLI ergeben haben, in Salpetersäure nicht ausreichend löslich (4), so daß Klärschlamm aus solchen Brennelementen zur vollständigen Gewinnung des

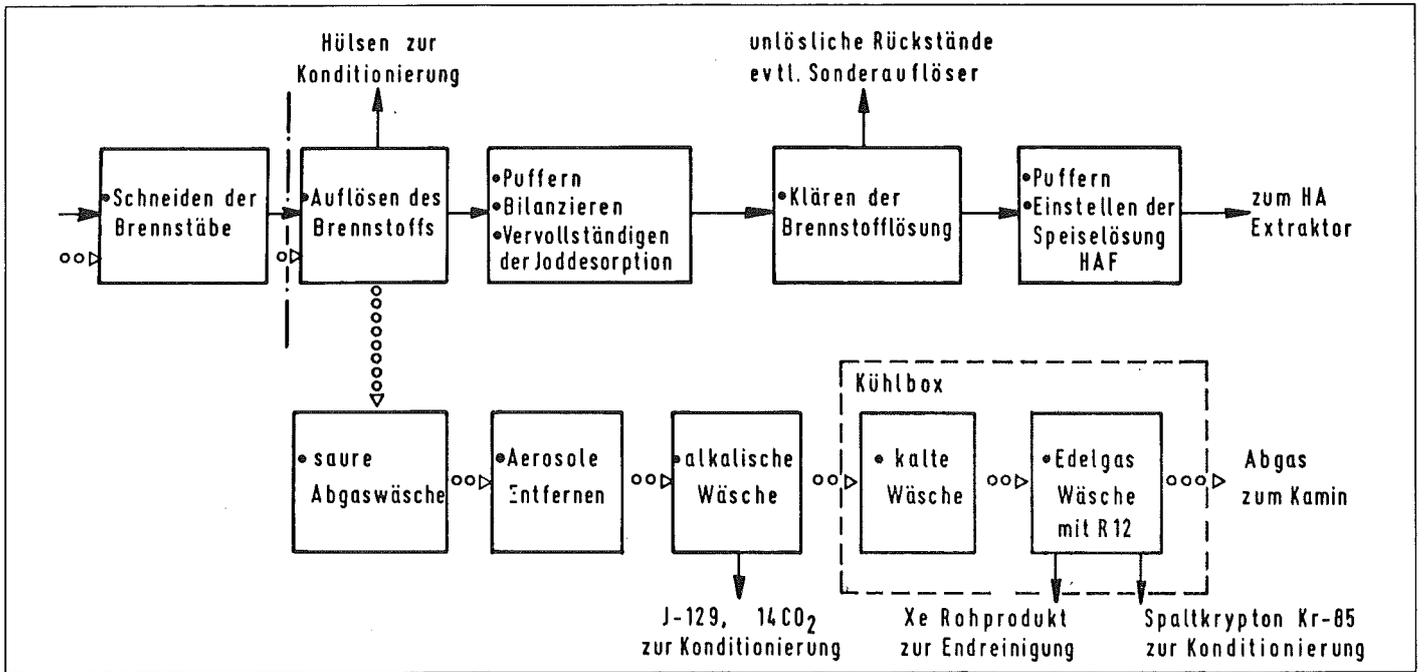


Abb.4: Chemisches Head-End MILLI-II, Grundschemata

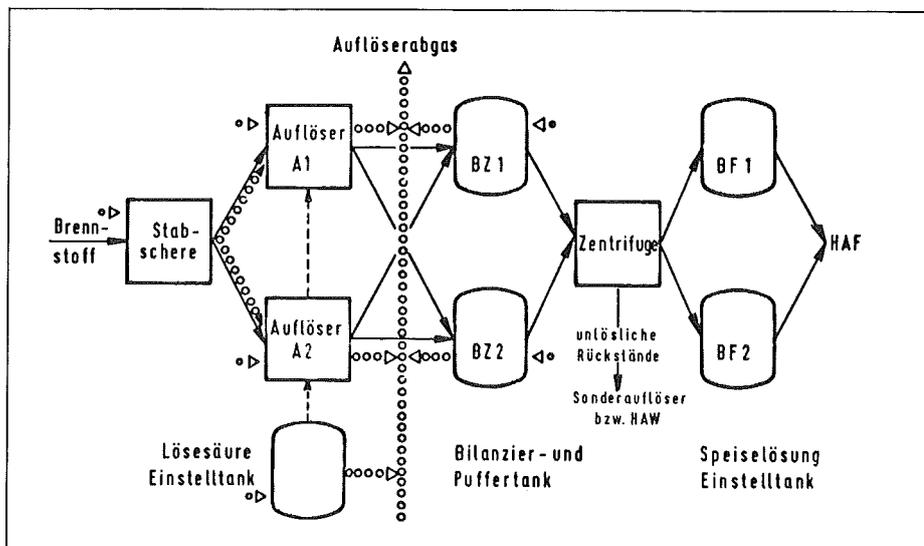


Abb.5: Brennstoff-Auflösung MILLI-II, Grundschemata

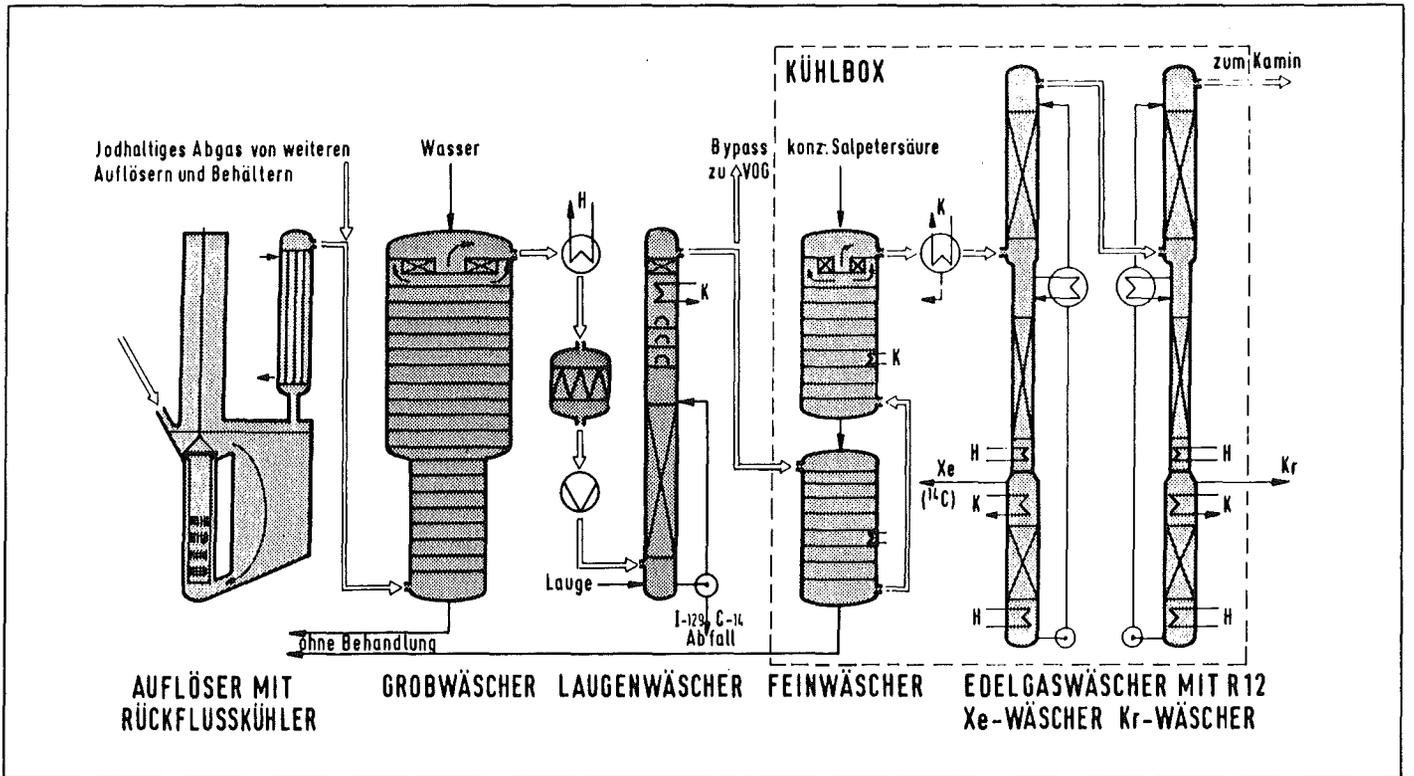


Abb.6: Auflöserabgas-Reinigung MILLI-II, vereinfachtes Verfahrensschema

Spaltmaterials einem Nachauflöser zugeführt und mittels Salpetersäure/Flußsäure, einem sehr korrosiven Medium, aufgelöst werden muß. Aufgrund dieser negativen Erfahrungen hat die Alkem zwischenzeitlich zwei Verfahren zur Erzeugung gut löslichen MOX-Brennstoffs entwickelt und eingeführt, das geschilderte Problem ist somit nur temporär von Belang.

Abbildung 6 zeigt ein vereinfachtes Fließbild der Auflöserabgas-Reinigung (6). Das Abgas wird unter Luft- oder Sauerstoffzusatz durch eine Gegenstrom-Waschkolonne geführt, in der die bei der Auflösung gebildeten Stickoxide aufoxidiert und mittels verdünnter Salpetersäure zurückgewaschen werden, während Jod weitgehend im Abgasstrom verbleibt. Die zurückgewonnene, schwach jodhaltige Säure wird in den Auflöser rezykliert. Das Abgas passiert sodann eine Serie von Aerosolfiltern und eine Waschkolonne, in der das Jod mittels Natronlauge ausgewaschen wird. Hierbei wird auch Kohlenstoff-14 als CO_2 absorbiert. Eine abschließende Kaltwäsche mit 90-prozentiger Salpetersäure bei bis zu -50°C scheidet letzte Reste von Jod und Stickoxiden ab. Die Krypton-Rückhaltung ist aus Strahlenschutzgründen nicht erforderlich, soll jedoch zur betrieblichen Demonstration eines in Karlsruhe entwickelten einfachen Verfahrens (11), der Gegenstromwäsche mit Dichlordifluormethan (Kältemittel R12), in die Anlage aufgenommen werden.

Extraktion. Die Abtrennung und Reinigung des Plutoniums und Urans geschieht durch ein modifiziertes PUREX-Verfahren mit drei Extraktionszyklen für jedes Produktelement (12). Das Standard-Fließschema (Abb.7) sieht die Anwendung von 30 Vol.-% TBP und die U/Pu-Trennung im zweiten Zyklus vor. Es können jedoch ohne weiteres andere TBP-Konzentrationen (z.B. 20 Vol.-%) eingesetzt werden. Als Extraktionsapparate finden gepulste Siebbodenkolonnen Anwendung, die im Standard-Verfahrensschema entsprechend Abb.8 angeordnet sind; durch geeignete Verknüpfung der Kolonnen können diese aber auch so durchfahren werden, daß die U/Pu-Trennung im ersten Extraktionszyklus vorgenommen werden kann. Man erzielt auf diese Weise ein Höchstmaß an Flexibilität hinsichtlich der Erprobung und Optimierung unterschiedlicher Extraktionsfließbilder unter repräsentativen Betriebsbedingungen. Abbildung 9 zeigt ein vereinfachtes Verfahrensschema der Endreinigungszyklen.

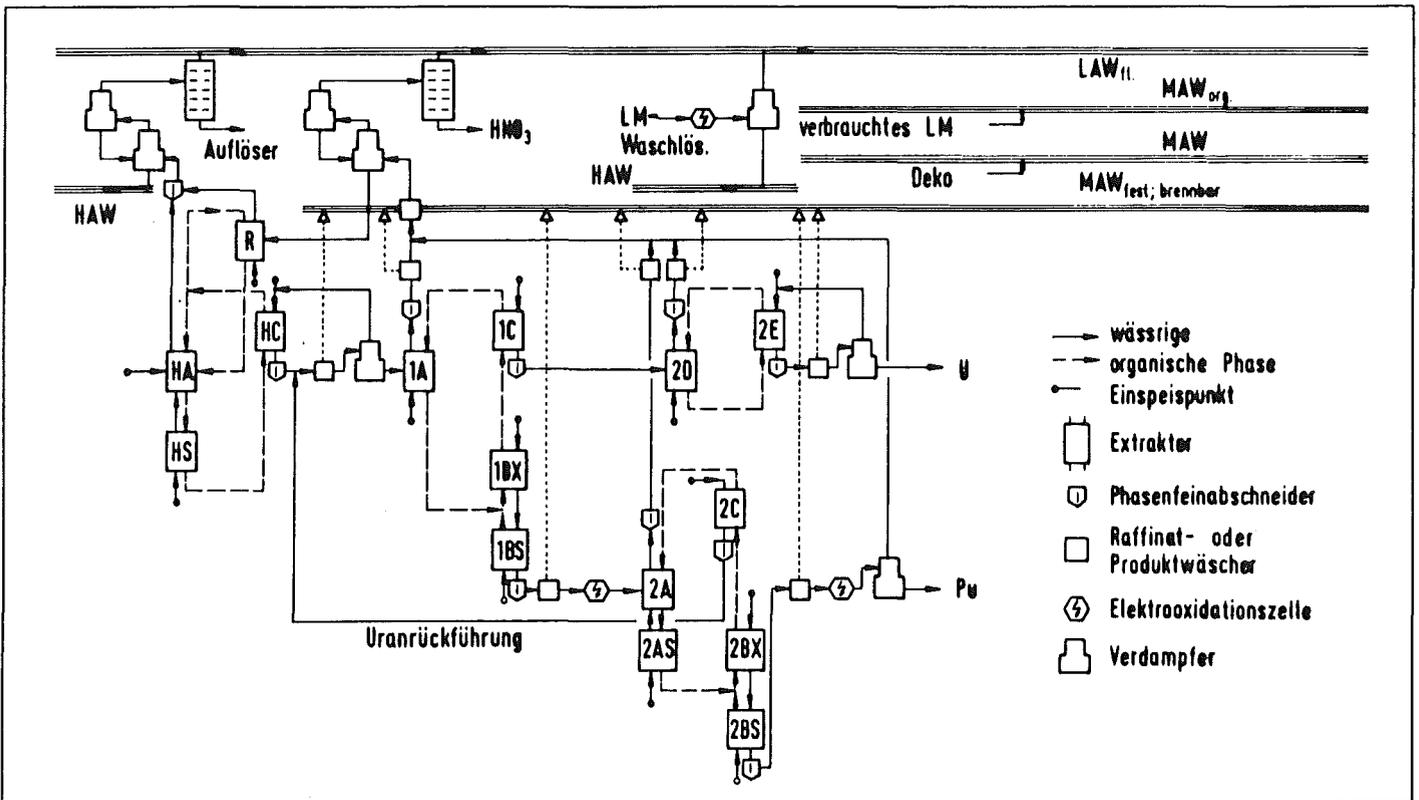


Abb.7: Prinzipfließbild des Extraktionsverfahrens MILLI-II mit Säurerückgewinnungs- und Wastesystem

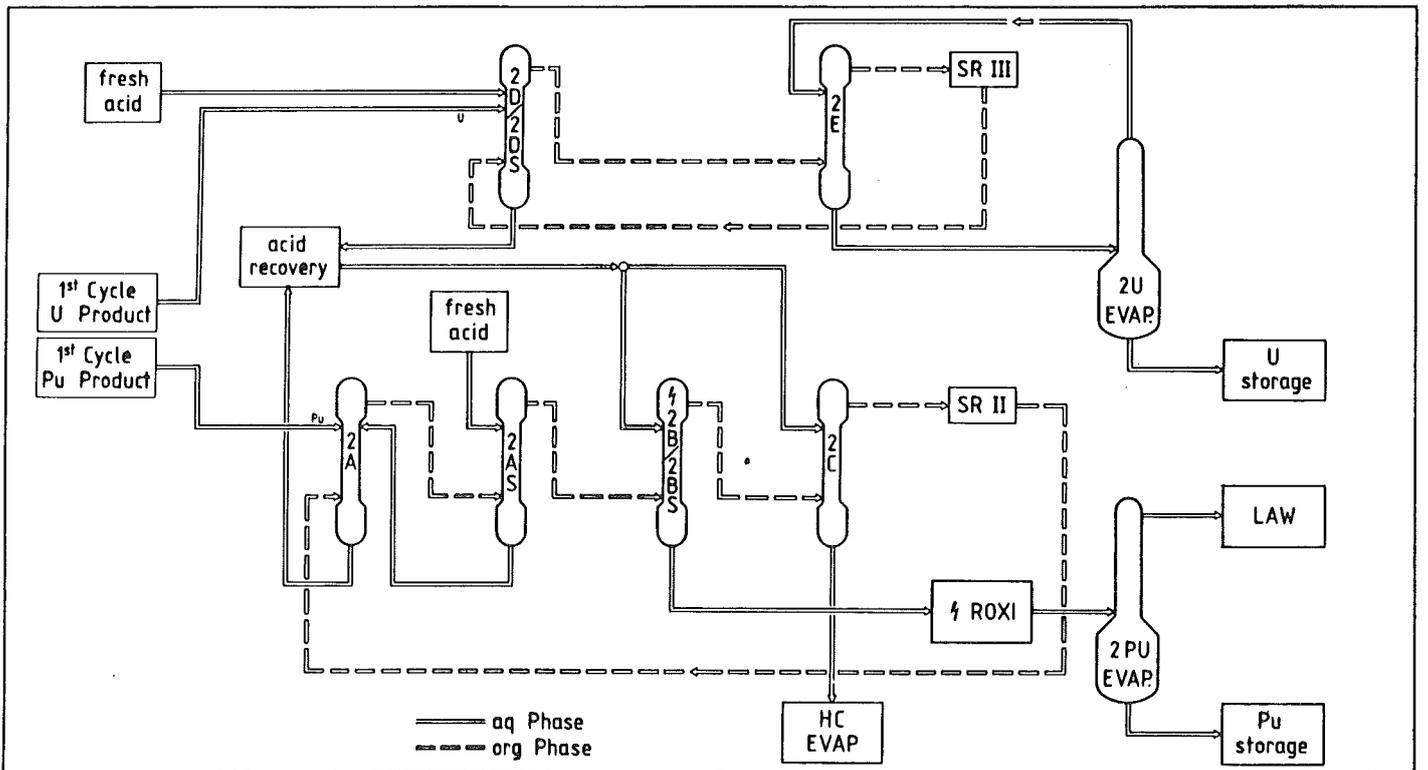
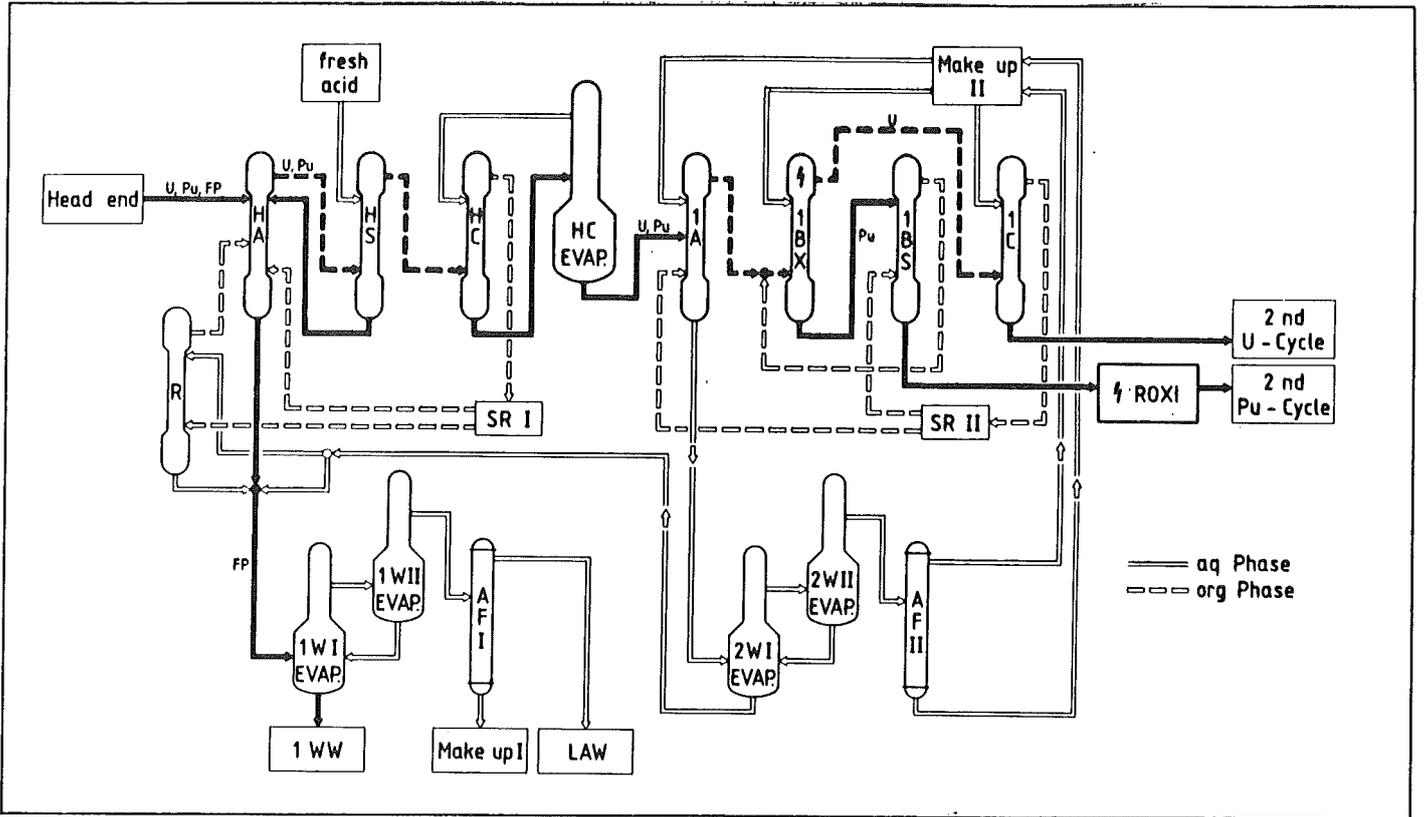


Abb.8 und 9: Verfahrensschema Extraktion

Das Extraktionsverfahren weist folgende Besonderheiten auf, die auf KfK-Entwicklungen beruhen und anhand der Fließbilder Abb.7 bis 9 erläutert werden sollen:

1. Die U/Pu-Trennung in der LBX-Kolonne und die Pu-Rückextraktion in der 2BX-Kolonne erfolgen durch interne Elektro-Reduktion (ELKE-Prozeß), die Plutonium-Rückoxidation in den Produktlösungen aus der LBX- und 2BX-Kolonne geschieht ebenfalls elektrochemisch (ROXI-Prozeß) (13). Diese Verfahren haben nach intensiver Betriebserprobung in MILLI und WAK sowie neuerdings in der PUTE (im MILLI-II-Durchsatzmaßstab) ihre Betriebsreife demonstriert(5).
2. Die wäßrigen Raffinat-(Abfall)-Ströme aus den Trenn- und Reinigungszyklen, d.h. die aus den 1A-, 2A- und 2D-Kolonnen ausströmenden wäßrigen Raffinate, sind infolge der vorstehend beschriebenen Anwendung elektrochemischer Verfahrensweisen praktisch salzfrei. Sie können deshalb in dem zweistufigen Verdampfer 2WI-2WII mit Rektifizierkolonne AFII auf ein sehr kleines Restvolumen eingedampft werden. Die zurückgewonnenen, weitgehend aktivitätsfreien Säure- und Wasserfraktionen aus der AFII-Kolonne werden über die niederaktive Chemikalienvorbereitung (Make-up II) in den Prozeß zurückgeführt. Das Konzentrat aus dem 2WI-Verdampfersumpf wird in die "Rework"- oder R-Kolonne geführt, in der durch Extraktion mit 30% TBP das "verlorene" Plutonium zurückgewonnen wird, und dann zusammen mit dem aus der HA-Kolonne ausströmenden Raffinat, dem HAW, in das HAW-Verdampfersystem geleitet. Letzteres besteht ebenfalls aus einem zweistufigen Verdampfer (1WI-1WII) mit Rektifizierkolonne (AFI). Der HAW wird um einen Faktor von etwa 4 eingedampft und das HAW-Konzentrat bis zur Endverfestigung zwischengelagert. Die Säurefraktion aus der AFI-Rektifizierkolonne wird über die mittelaktive Chemikalienvorbereitung (Make-up I) rezykliert, die Wasserfraktion als schwach aktiver Abfall (LAW) weiterbehandelt.
3. Für die Wäsche des zu rezyklierenden organischen Extraktionsmittels wird ebenfalls ein "salzfreier" Prozeß, nämlich die Wäsche mit Hydrazincarbonat-Lösung in einem Holley-Mott-Mischabsetzer, angewandt. Die verbrauchten Hydrazin-Waschlösungen werden über eine ROXI-Elektrooxidationszelle geführt und das Hydrazin elektrochemisch zu Wasser und Stickstoff oxidiert. Die praktisch salzfreie Produktlösung

wird in einem Mehrzweck-Verdampfer aufkonzentriert und das Konzentrat in das HAW-Verdampfersystem (LWI-Verdampfer) eingespeist.

4. Zur Eindampfung vorgesehene wäßrige Produkt- und Raffinatlösungen müssen vor Einspeisung in einen Verdampfer von gelösten oder suspendierten organischen Verunreinigungen befreit werden. Für plutoniumhaltige Produktlösungen ist das Sorptionsverfahren mit Lewapol-Harzen (13) vorgesehen, während andere Produkt- und Raffinatlösungen durch die grundsätzlich bekannte Dampfwäsche (steam strip) gereinigt werden.

Der besondere Vorteil der beschriebenen Verfahrensweisen besteht darin, daß alle mittelaktiven wäßrigen Prozeßraffinate (MAW) in eine kleine Hochaktiv-Fraktion, die dem HAW zugeschlagen wird, und einfach zu behandelnde, teilweise rezyklierbare Niederaktivfraktion zerlegt werden. Mit anderen Worten, der MILLI-II-Extraktionsprozeß erzeugt im Normalbetrieb keinen wäßrigen Prozeß-MAW mehr. Dies stellt wegen der hohen MAW-Verarbeitungs- und Lagerkosten eine erhebliche Vereinfachung und Verbilligung des Wiederaufbereitungsverfahrens dar.

Abfallbehandlung. Für die Behandlung und Zwischenlagerung der radioaktiven Abfälle stehen bewährte Verfahrensweisen zur Verfügung; das Vorhandensein entsprechender Betriebsanlagen sollte ein wichtiger Gesichtspunkt für die Standortwahl der Pilot-Wiederaufbereitungsanlage sein.

Das HAW-Konzentrat wird in einem Zwischenlager von 40 m³ Nutzkapazität zwischengelagert und nach kurzer Zwischenlagerzeit an eine am Standort vorhandene oder zu errichtende HAW-Verglasungsanlage abgegeben. Feed-klärschlamm wird entweder dem HAW zugeschlagen oder getrennt zu einem festen Endlagerprodukt verfestigt. Feste Strukturmaterial- und Hüllrohrabfälle werden in Standard-400-Liter-Fässer abgefüllt und einzementiert. Jod und Kohlenstoff-14-dioxid werden aus der alkalischen Abgaswäsche in Gegenwart eines Oxidationsmittels mit Bariumhydroxid-Suspension als Bariumjodat bzw. Bariumcarbonat gefällt, der Niederschlag wird direkt zementiert. Mittel- und schwachaktive Abwässer sowie entsprechende feste Abfälle werden in Zwischenlagern gesammelt und an eine am Standort vorhandene oder zu errichtende Konditionierungsanlage

abgegeben; es wurde bereits darauf hingewiesen, daß die zu erwartenden Volumina an Flüssig-MAW gegenüber einer konventionellen Anlage drastisch reduziert sind.

Installations- und Wartungskonzept

Das für die MILLI-II entwickelte Installations- und Wartungskonzept wird in dem anschließenden Beitrag von G. Böhme (13) eingehend dargestellt, so daß an dieser Stelle einige grundsätzliche Anmerkungen ausreichen.

Das Konzept basiert auf einer Installationstechnik, die einen vollständig fernbedienten und zerstörungsfreien Ein- und Ausbau aller Apparategruppen und Rohrleitungen innerhalb des Heißzellenkomplexes ermöglicht. Hierzu werden alle chemischen Apparate, zu funktionellen Gruppen zusammengefaßt, in weitgehend genormten Prozeßgestellen ("Module" oder amerikanisch "Racks") montiert und diese an den Seitenwänden einer großen, tunnelförmigen Prozeßzelle aufgehängt. Rohrleitungsverbindungen, elektrische Zuleitungen usw. werden durch fernbediente Kupplungselemente hergestellt. Als Fernbedienungswerkzeuge dienen insbesondere ein durch Beobachtung mit Fernsehkameras steuerbares Brückenkransystem, ergänzt durch Elektromanipulatoren, sowie im Kopfteil der Anlage, wohin bevorzugt auch die Bedienungselemente verlegt werden, konventionelle Master-Slave-Manipulatoren unter Direktsicht durch Strahlenschutzfenster. Der mechanische Prozeßteil ist aus einer Reihe von Zweckmäßigkeitsgründen in einem eigenen Heißzellenkomplex mit eigenen Bedienungselementen untergebracht, ebenso wie der am Ende des Zellengebäudes angeordnete hochaktive Reparatur- und Wartungsbereich. Die aus diesem Konzept sich ergebende Anordnung des Heißzellenkomplexes, die Anordnung der Prozeßmodule in der Prozeßzelle, der exemplarische Aufbau einzelner wichtiger Prozeßapparategruppen in den Modulen, sowie Einzelheiten der Fernbedienungsgeräte und vorhandene Erfahrungen mit diesen werden in dem Beitrag von G. Böhme (13) diskutiert, auf den ausdrücklich verwiesen sei.

Wir versprechen uns von diesem Konzept besonders folgende Vorteile:

- Stillstandszeiten der Anlage infolge von Wartung, Reparaturen oder Umrüstung werden gegenüber konventioneller Bauweise, wie sie etwa die WAK repräsentiert, erheblich verringert.
- Demzufolge kann mit einer wesentlich erhöhten Anlagenverfügbarkeit gerechnet werden.
- Der Wegfall strahlenabschirmender Zellenzwischenwände führt zu einer kostengünstigen, kompakten Bauweise.
- Die einfache und schnelle Austauschbarkeit gestattet es, die Zahl der redundant vorzusehenden Apparate im Vergleich zu konventioneller Bauweise erheblich zu reduzieren.
- Die einfache Umrüstbarkeit ermöglicht das Einbringen und Testen neu entwickelter Verfahrensweisen auch nach Betriebsaufnahme und erfüllt die an eine moderne Pilotanlage zu stellende Forderung nach Flexibilität in besonderem Maße.
- Der weitgehende Verzicht auf Personeninterventionen läßt eine deutliche Verringerung der Strahlenbelastung des Wartungspersonals erwarten.

Gebäudekonzept

Zum Schluß sei kurz der Gebäude-Entwurf dargestellt, der in besonderem Maße durch das Heißzellenkonzept bestimmt ist. Die MILLI-II besteht, wie die in Abb.10 und 11 wiedergegebenen Grund- und Aufrisse zeigen, aus einem Zellen- und einem Betriebsgebäude. Das Zellengebäude ist 65 m lang, 35 m breit und erhebt sich 25 m über Gelände. Entsprechend heutigen Genehmigungsanforderungen wurde eine Stahlbetonhülle mit 1,80 m Wanddicke vorgesehen, die die Zelleneinbauten vor äußeren Einflüssen wie Flugzeugabsturz, Explosion einer Gaswolke usw. schützt. Innerhalb, aber getrennt von dieser Schutzhülle, befindet sich federnd gelagert und damit erdbebensicher der Zellenblock mit den dazugehörigen Betriebs- und Nebenräumen. Zur Vermeidung von Temperatureinflüssen auf die Schutzhülle wird außen eine wärmedämmte Metallverkleidung aufgebracht. Das Bau-

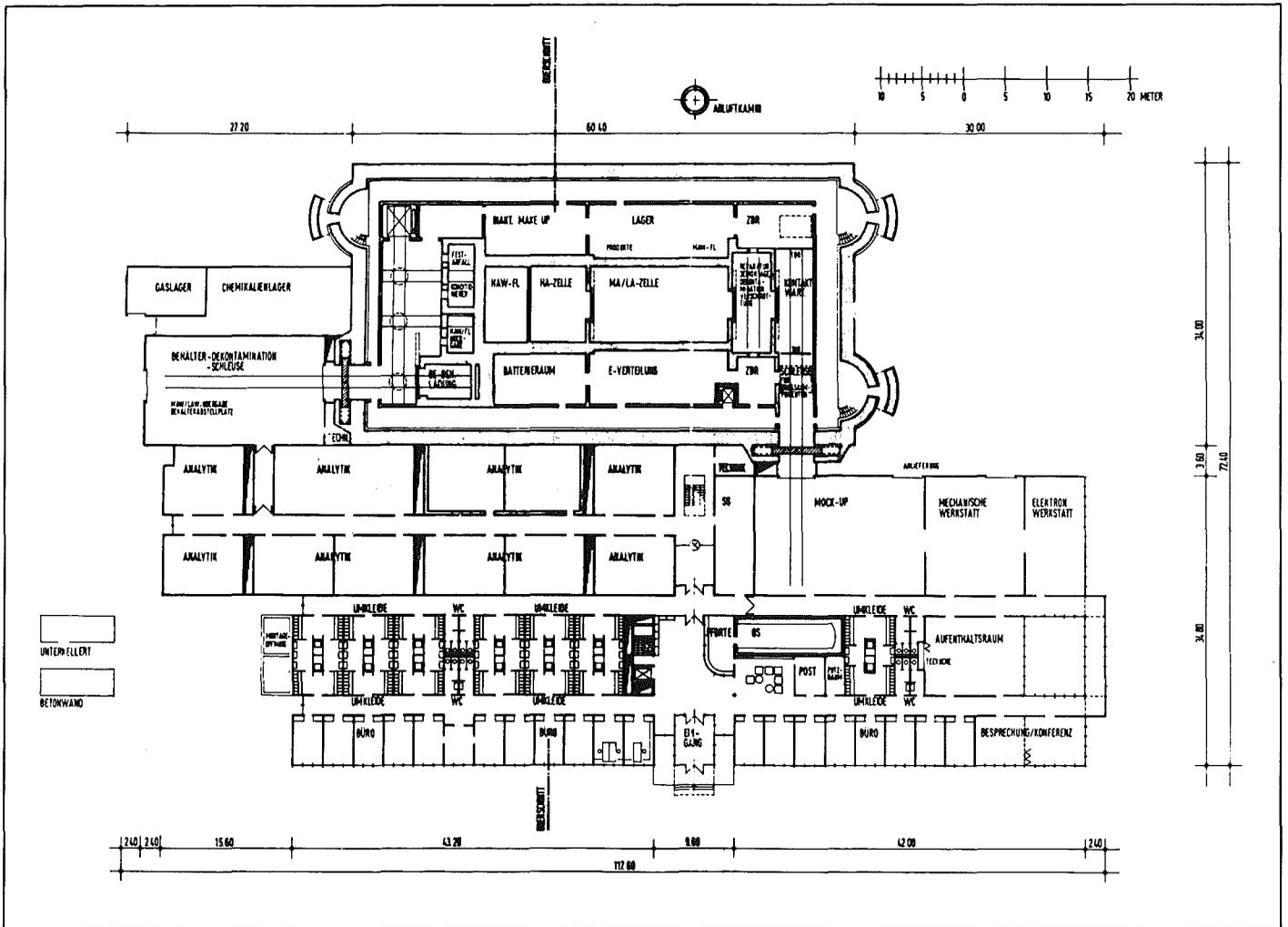


Abb.10: Grundriß des MILLI-II-Gebäudes (Erdgeschoß, Ebene 0,00)

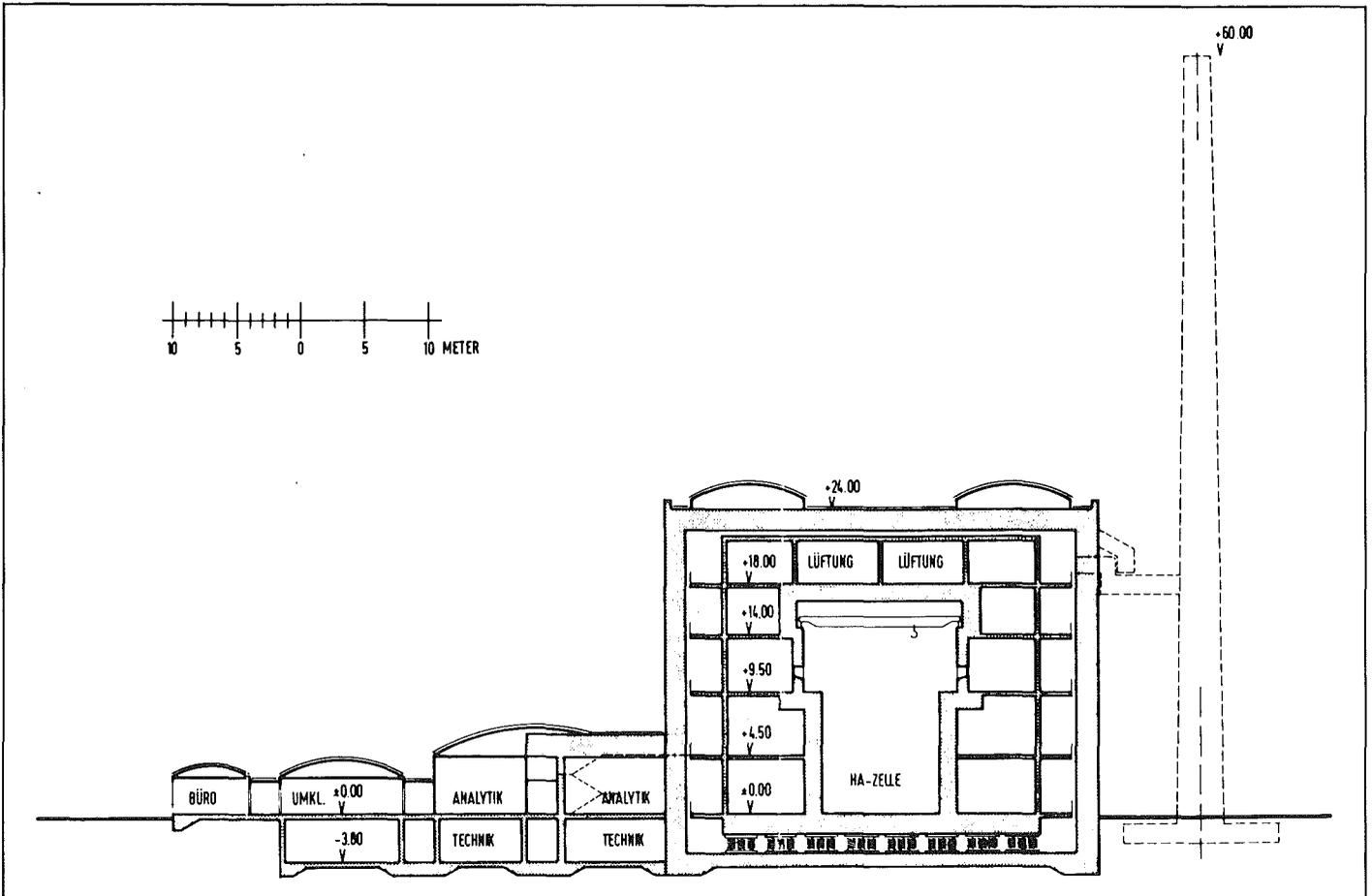


Abb.11: Querschnitt durch das MILLI-II-Gebäude

volumen des Zellengebäudes umfaßt rund 55.500 m³.

Das Betriebsgebäude ist eingeschossig mit Teilunterkellerung. Es enthält u.a. Büro-, Umkleide- und Aufenthaltsräume, Werkstätten und eine Montagehalle außerhalb des Kontrollbereichs sowie die analytischen Labors innerhalb des Kontrollbereichs. Das Ein- bzw. Ausschleusen von radioaktiven Materialien (bestrahlte Kernbrennstoffe, feste und flüssige Abfälle) erfolgt über die sogenannte Behälterschleuse, neben der ein Chemikalien- und Gaslager angeordnet ist. Das Kellergeschoß nimmt im wesentlichen die Infrastruktur auf, die zur Ver- und Entsorgung der Gesamtanlage benötigt wird, wie Zu- und Abluftanlagen, Elektroverteilung, Heizungsverteilung, Abwassersammelstation, Lager usw. Das Bauvolumen umfaßt rund 32.000 m³. Neben dem Zellengebäude befindet sich ein Kamin von 60 m Höhe, über den die gefilterte Abluft aus dem Kontrollbereich der Anlage an die Atmosphäre abgegeben wird.

Dank

An der Erarbeitung des Pilotanlagen-Konzeptes MILLI-II waren Fachleute aus verschiedenen Bereichen des Kernforschungszentrums Karlsruhe (Institut für Heiße Chemie = IHCH, Hauptabteilung Ingenieurtechnik = HIT, Hauptabteilung Bauwesen = Bau, Projekt Schneller Brüter = PSB) und von Interatom beteiligt, im einzelnen: G. Bestenreiner (Interatom), H.J. Bleyl (IHCH), G. Böhme (HIT), D. Ertel (IHCH), H. Frotscher (HIT), H. Goldacker (IHCH), L. Grimm (Bau), H. Haug (IHCH), E. Henrich (IHCH), W. Köhler (HIT), H. Lahr (PSB), D. Leuchtmann (IHCH), W. Ochsenfeld (IHCH), W. Rösch (IHCH), H. Schmieder (IHCH), W. Zetzl (IHCH). Ihnen allen sei auch an dieser Stelle herzlich gedankt, ebenso den Projektleitungen Schneller Brüter und Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung, die diese Arbeit unterstützt haben.

Literatur

- (1) H.O. Haug, Comparison of waste arising in FBR and LWR cycles, in: F. Baumgärtner, K. Ebert, E. Gelfort, K.H. Lieser (Hrsg)., Nukleare Entsorgung Bd.2, S.257, Verlag Chemie, Weinheim 1983.
- (2) K.H. Beckurts, T.J. Connolly, U. Hansen, W. Jaek, Nuclear energy futures, 11th World Energy Conference, München 1980, Bd.4B, S.239.
- (3) G. Bestenreiner, W. Köhler, H. Enderlein, K. Knecht, Brüterbrennelementstruktur und -zerlegung, dieser Tagungsbericht.
- (4) H.J. Bleyl, Erfahrungen mit der Aufarbeitung von KNK-II-Brennstoff in der MILLI, dieser Tagungsbericht.
- (5) H. Schmieder, Möglichkeiten zur Abfallminimierung und Vereinfachungen im Wiederaufarbeitungsprozeß, dieser Tagungsbericht.
- (6) E. Henrich, R. Hüfner, F. Weirich, Studies in the dissolver off-gas system of a spent FBR fuel reprocessing plant, in: Fast Reactor Fuel Cycles, Brit. Nucl. Energy Soc., London 1982, S.367.
- (7) G. Koch, Entwicklungsstand der Wiederaufarbeitung von Schnellbrüter-Brennelementen: ein internationaler Vergleich, Jahrbuch der Atomwirtschaft 1983, S.A25.
- (8) G. Koch, H. Goldacker, H.O. Haug, E. Henrich, W. Ochsenfeld, H. Schmieder, G. Böhme, W. Köhler, L. Grimm, MILLI-II: Konzeptstudie einer Pilotanlage zur Wiederaufarbeitung von Schnellbrüter-Brennelementen, KfK-Nachrichten 15 (1983) 158.
- (9) W. Köhler, H. Lahr, Lagerung, Wäsche und Transport von Brüterbrennelementen, dieser Tagungsbericht.
- (10) H. Lahr, W. Köhler, Das mechanische Head-End der Brüterbrennelement-Wiederaufarbeitung, dieser Tagungsbericht.

- (11) E. Henrich, R. Hüfner, F. Weirich, Edelgasrückhaltung bei der Wiederaufarbeitung durch eine drucklose Edelgaswäsche mit kleinem Radiokryptoninventar, KfK-Nachrichten 14 (1982), Nr.3, 172.
- (12) G. Koch, H.-J. Bleyl, G. Böhme, H. Goldacker, H.O. Haug, W. Ochsenfeld, H. Schmieder, Solvent extraction process and equipment for a LMFBR fuel reprocessing pilot plant, Internat. Solvent Extraction Conf. 1983, Denver, Paper 7d.
- (13) G. Böhme, Fernbediente Instandhaltungstechniken für eine Pilotanlage MILLI-II, dieser Tagungsbericht.

FERNBEDIENTE INSTANDHALTUNGSTECHNIKEN FÜR DIE PILOTANLAGE MILLI II

G. Böhme, H. Frotscher

Kernforschungszentrum Karlsruhe

Neben hoher Anlagenverfügbarkeit und niedriger Personendoses sollten bei einer Pilot-WA auch ein schneller Wechsel von Prozesskomponenten und fernbediente Interventionen möglich sein.

Solche Forderungen lassen sich mit einem Instandhaltungskonzept erfüllen, welches aus einer Kombination von Heiße-Zellen-Technik und fernbedient austauschbaren modularen Prozeßkomponenten besteht.

Abbildung 1 zeigt einige Varianten dazu:

Die Vorteile des Vorzellenkonzepts (Fig. 1) wie z.B. die Teilabschirmung kommen jedoch bei einer Pilotanlage mit geringem Aktivitätsinventar und intermittierender Betriebsweise nicht voll zum Tragen und die für fernbediente Interventionen nötige fortschrittliche Fernbedienungstechnik (EMSM u. TV) eines

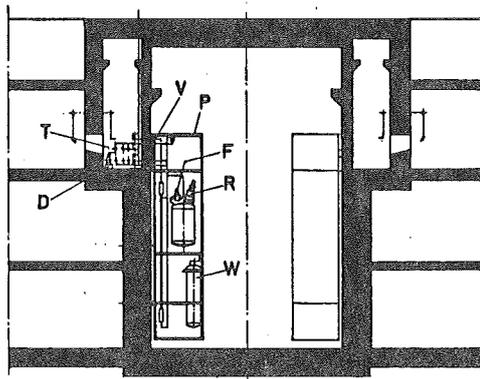
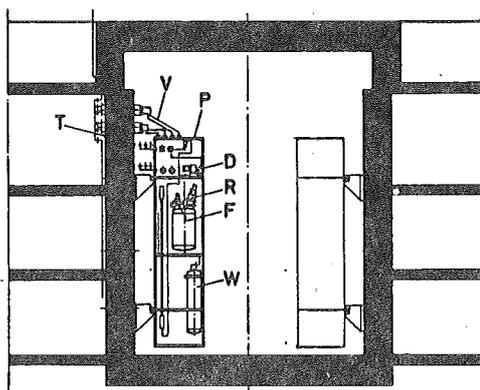


Fig. 1: Vorzellen-Konzept



- D - Dosierpumpe
- F - Förderpumpe
- R - Rührwerk
- T - Rohrtrasse
- V - Rackversorgung
- W - Wärmetauscher-Rohrbündel
- P - Prozeßgestell

Fig. 2: FEMO-Konzept

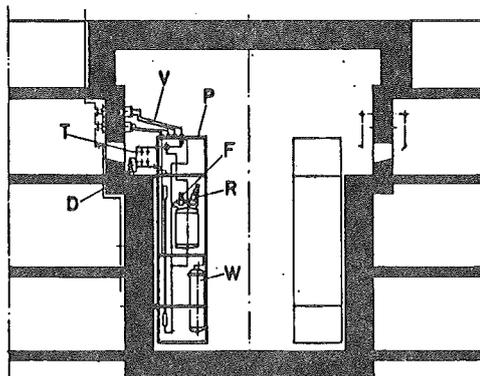


Fig. 3: MILLI II-Konzept

HEF-ähnlich /1/ verbesserten FEMO-Konzepts (Fig. 2) bedarf erst noch der Bewährung. Für MILLI II erscheint deswegen die Variante gemäß Abb. 1, Fig. 3 vorteilhaft. Dabei ist der Prozeß in Funktionsgruppen (Abb. 2, Pos. 1 bis 26) unterteilt, deren Apparate in Modulen unterschiedlicher Größe montiert und an den Seitenwänden einer hoch- und mittelaktiven Prozeßzelle derart angeordnet sind (Abb. 3), daß

Lista zur Apparateaufstellung MILLI-II, Abb. 6

- (1) Auflöser
- (2) Auflöser
- (3) Korb-Meßposition
- (4) 8 x Faßschleuse
- (5) Bflanzierung
- (6) Sonderauflöser
- (7) HA-Vorlage
- (8) HA-HS1/HS2-HC-Kolonnen + Produkt-Mischer
- (9) HCP-Verdampfer
- (10) LA-1C-Kolonnen + Produkt-Mischer
- (11) LBX-1BS-1C-Kolonnen + Produkt-Mischer
- (12) ZA-2AS-2BX/2BS-2C-Kolonnen + Produkt-Mischer
- (13) Pu-Verdampfer
- (14) Make-up II
- (15) Behälterabgasreinigung (Pu-haltig)
- (16) Vorwäsche Auflösersgas + Behälterabgasreinigung (T-FP, Pu-haltig)
- (17) HAM-Verdampfer + Make-up I
- (18) HAM-Verdampfer
- (19) HAM-Behälter + R-Kolonne
- (20) 8 x Rack für Querverbindungen
- (21) 2D/2DS-ZE-Kolonnen + Produkt-Mischer
- (22) Solvent-Regeneration I
- (23) Solvent-Regeneration II + III
- (24) Allzweck-Verdampfer
- (25) ZW-Verdampfer
- (26) ZW-Verdampfer
- (27) Pu-Nitrat-Lager
- (28) U-Verdampfer
- (29) Uranyl-Nitrat-Lager
- (30) Uranyl-Nitrat-Lager (hohe Anreicherung)
- (31) 6 x HAM-Tanks
- (32) 5 x HAM-Raffinat-Tanks
- (33) 2 x Beladeföffnung vertikal
- (34) BE-Schwenkeinrichtung
- (35) BE-Lager
- (36) BE-Zerlegebank
- (37) Brennstabschere
- (38) Hüllkasten-Ablage
- (39) Hub-Drehtisch
- (40) Instandhaltungszelle
- (41) Instandhaltungsbox
- (42) Kühlbox für Edelgaswäsche

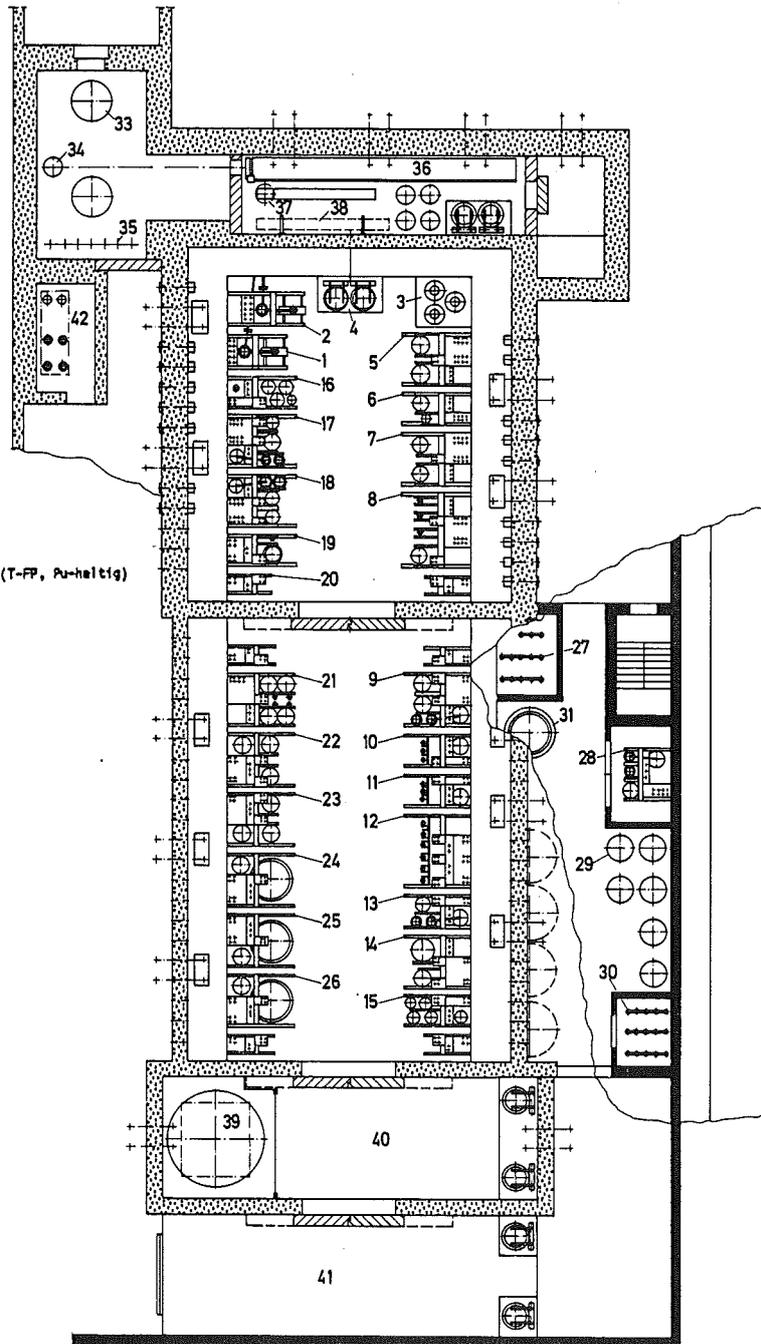


Abb. 2 Zellenblock - Grundriß mit Apparateaufstellung

0 1 2 3 4 5m

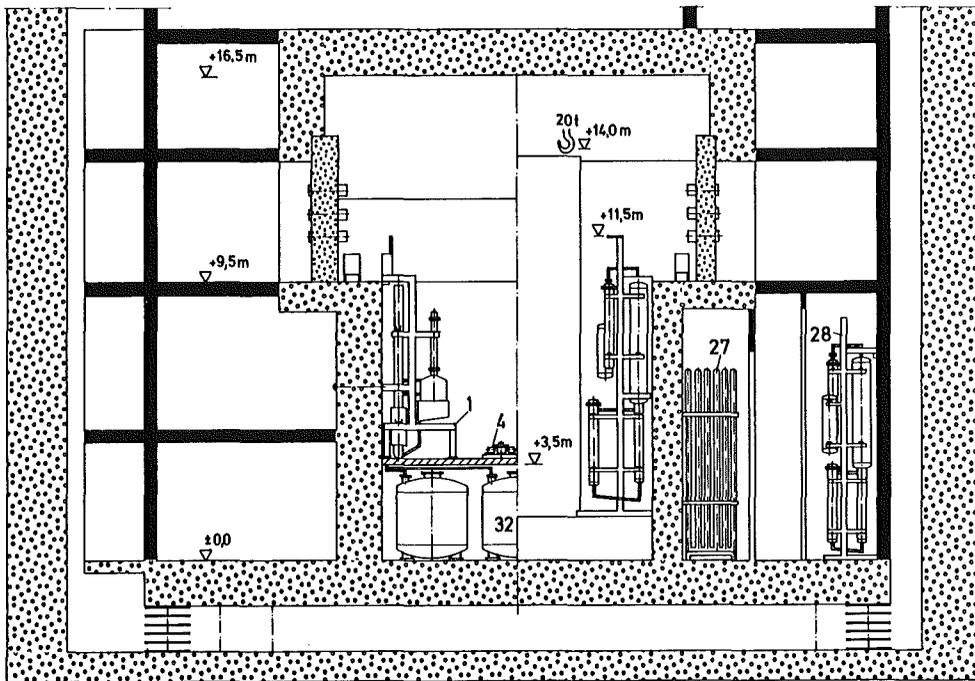


Abb. 3 Zellenblock-Querschnitt
mit Apparatenaufstellung

0 1 2 3 4 5m

im Bereich des Modulkopfes zwischen je zwei Modulen eine Heiße-Zellen-Arbeitsstation mit Parallelmanipulatoren und Strahlenschutzfenster liegt. Damit sind dort fernbedienter Betrieb oder auch fernbediente in-situ-Instandhaltung von Armaturen, Instrumentierungen, Probenehmern usw. durchführbar (Abb. 4), wie es für die Nutzung der Anlage als Testbett zur Erprobung neuer Apparate und Verfahren erforderlich ist.

Beim Aus- und Wiedereinbau eines Moduls müssen 40 bis 80 Rohrleitungen de- und remontiert werden. Der größte Teil sind inaktive Meß- und Versorgungsleitungen, die gebündelt durch Wandstopfen in die Prozeßzelle geführt werden.

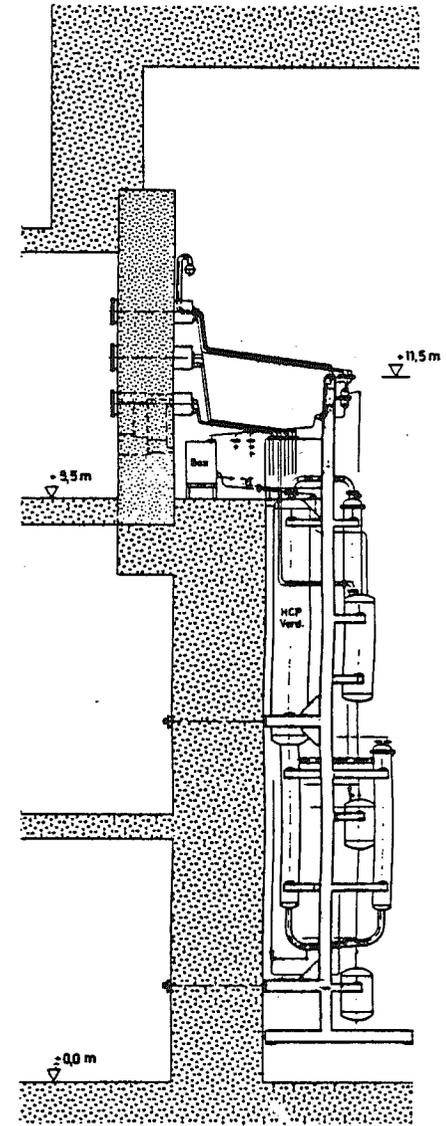
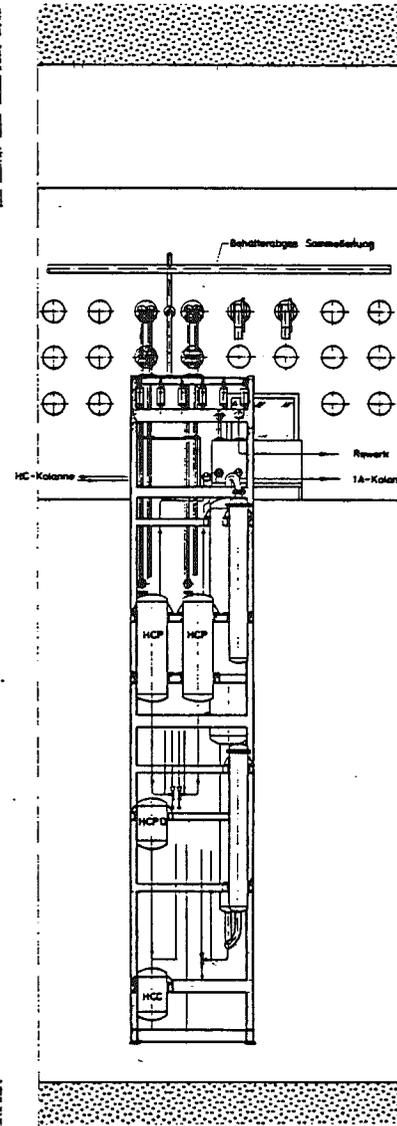
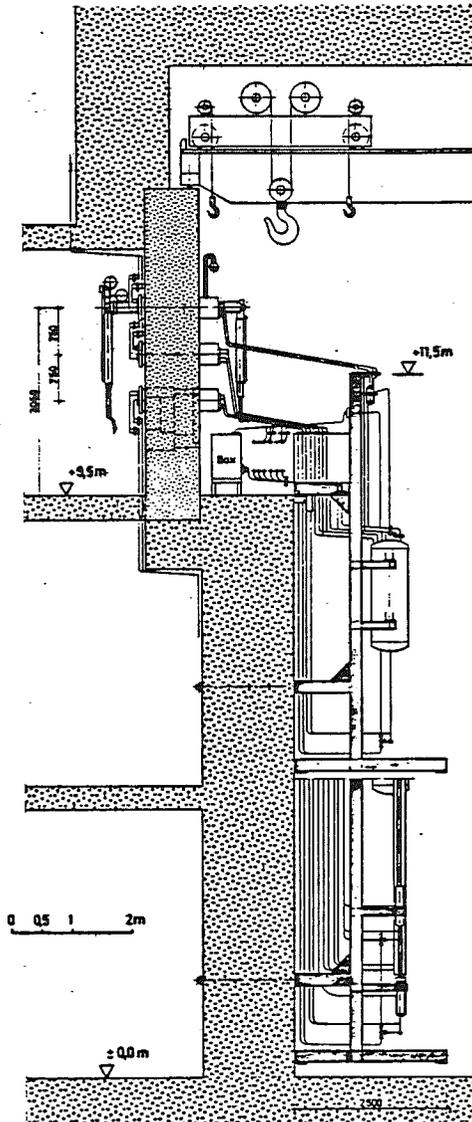
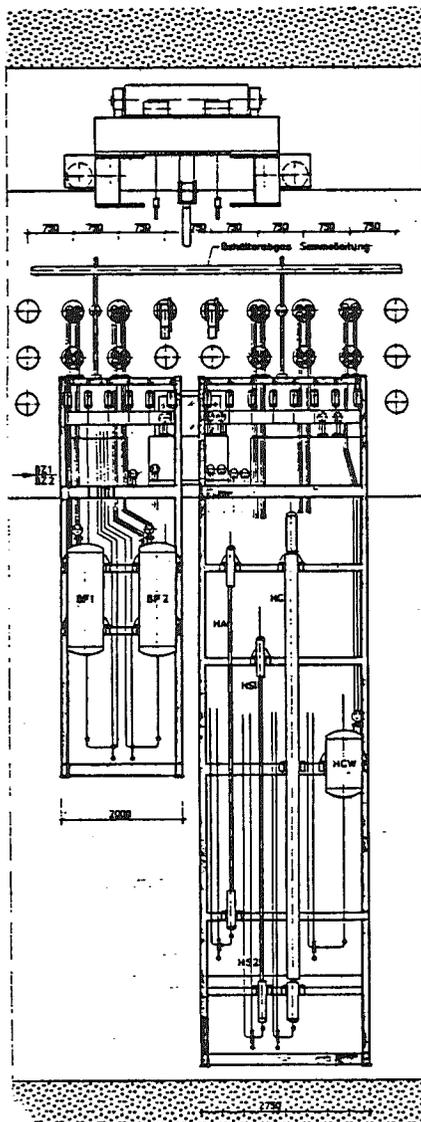


Abb. 4 Modul für Einstellbehälter- und HA/HS/HC-Kolonnen

Modul für Vorlage-Behälter und HCP-Verdampfer

Herausnehmbare Rohrleitungszwischenstücke (Jumper), deren Schraubverbindungen mittels elektrischem Schlagschrauber betätigt werden, haben sich dabei bewährt (/2/, /3/). Sie verbinden die meist oben angeordneten Rohranschlüsse eines Moduls mit denen der Wandstopfen, der Nachbarmodule oder der zwischen Modulkopf und Zellenwand geführten aktiven Rohrleitungstrasse.

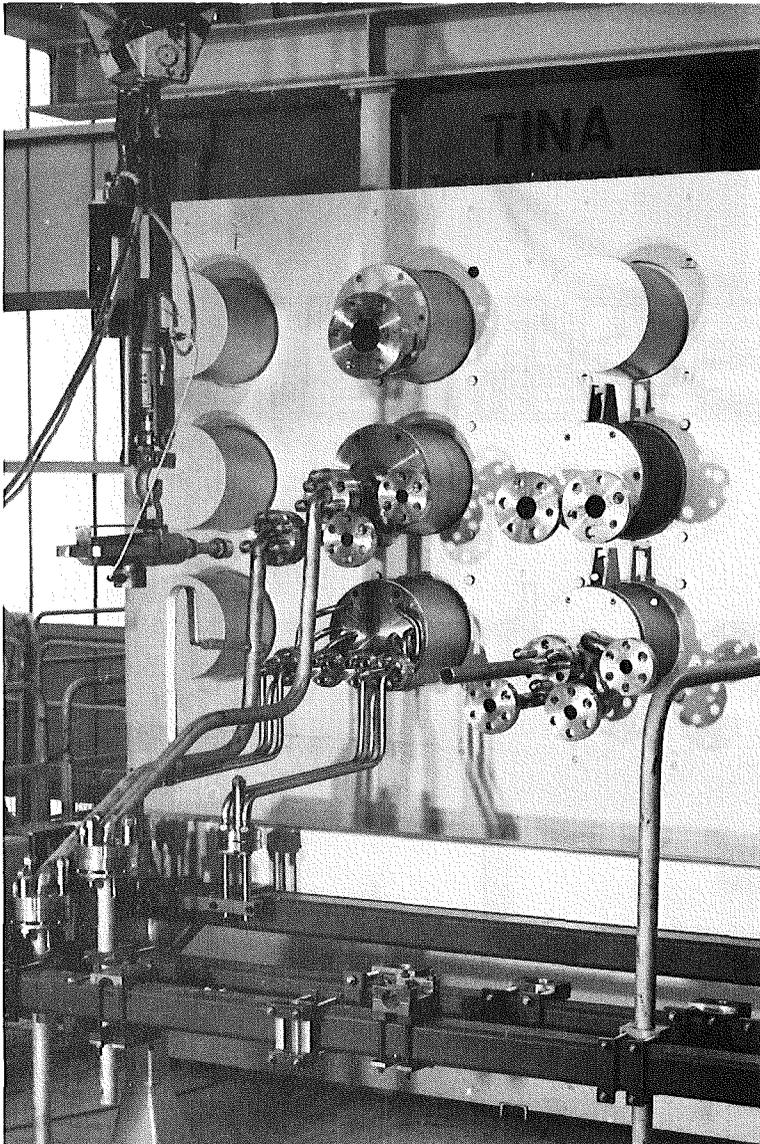


Abb. 5 zeigt einen derartigen Versuchsaufbau im KfK/IT-Technikum.

Es ist offensichtlich, daß die fernbedient lös- und fügbaren Rohrleitungsverbindungen bei diesem Konzept eine Schlüsselrolle spielen.

Deswegen wurde bei KfK schon vor 1979 mit der Entwicklung solcher Bauelemente begonnen.

Sie sind so ausgelegt, daß sie auch bei großen Fertigungs- und Montagetoleranzen sowie bei z.B. durch thermische Dehnung hervorgerufener Deformation der Module im Betrieb dicht bleiben. Ihre Belastbarkeit ist deswegen größer als der Formänderungswiderstand der Jumper.

Abb. 5

Abb. 6 und 7 zeigen einige der diesen Kriterien genügenden fernbedienbaren Rohrleitungsverbindungen, die bei KfK für die PAMELA-Anlage der DWK

in Mol (B) gebaut und kalterprobt wurden und deren Eignung in den nächsten Jahren im Betrieb dort nachgewiesen werden soll /4/.

Auf grundsätzlich ähnliche Weise lassen sich auch Armaturen, Pumpen, Rührer, Wärmetauscher-Rohrbündel sowie auch Elektroverbindungen und die mechanischen Befestigungen der Module in den Prozeßzellen fernbedient de- und remontierbar gestalten.

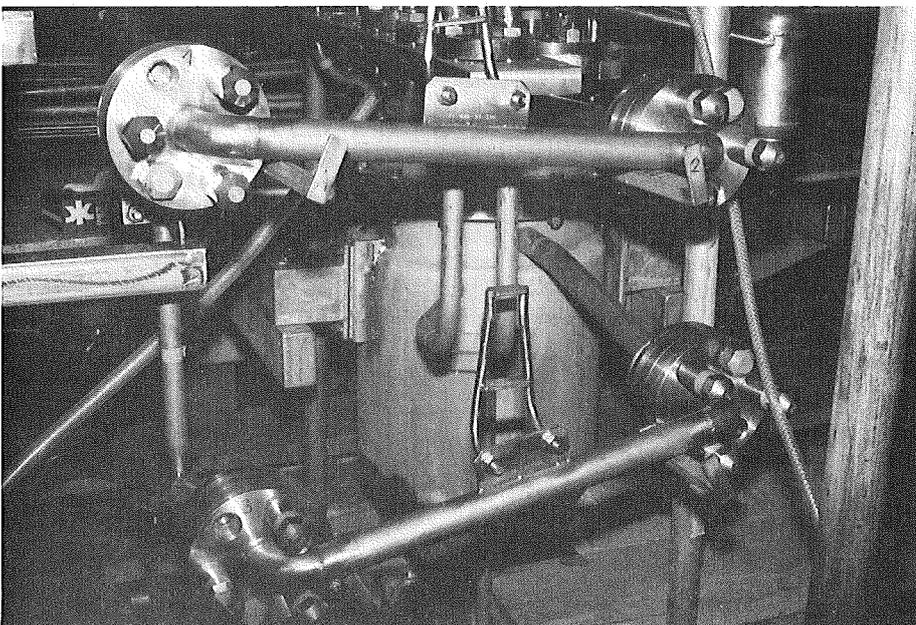
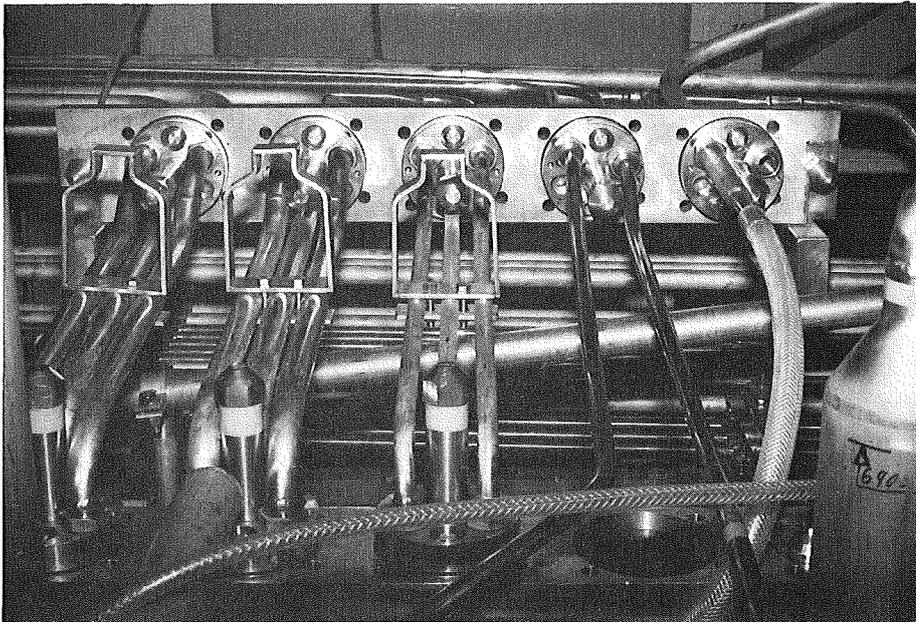


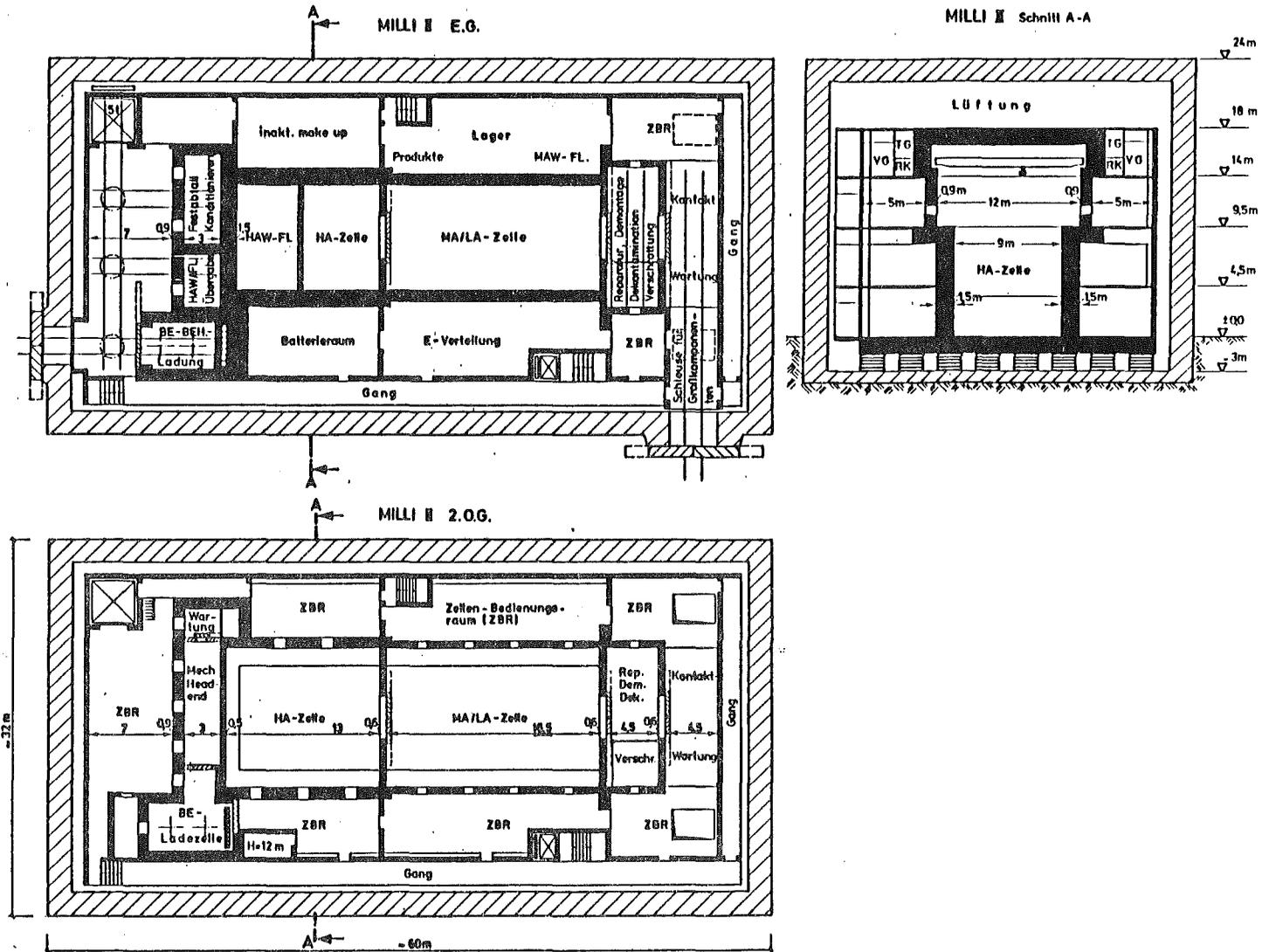
Abb. 6

Ein besonderer Vorteil dieser lös- und fügaren Verbindungen ist es auch, daß sie erforderlichenfalls ausschließlich mit dem Kranhaken und einem daran hängenden elektrischen Schlagschrauber betätigt werden können.

Versuche haben bewiesen, daß die Module in chemischen Prozeßzellen somit auch dann aus- und wiedereingebaut werden können, wenn keine Manipulatoren oder Teleskopkräne sondern nur ein Brückenkran zur Verfügung steht und zur Beobachtung Fernsehkameras mit verschiedenen Blickrichtungen eingesetzt werden können.

Beim MILLI II-Konzept sind am Ende der Prozeßzellen abgeschirmte und unabgeschirmte Positionen zur Dekontamination, Demontage, Reparatur oder Verschrottung der mittels Zellenkran transportierten Module vorgesehen (vgl. Abb. 2, Pos. 39 bis 41).

Abbildung 7 zeigt eine mögliche Anordnung der Gesamtanlage.



Referenzen

- /1/ J.R.White et al.:
"Facility and Equipment Concepts for the HEF",
Proc. of 28th Conf. Remote Syst. Technology,
S. 3-4, (1980, USA)
- /2/ J.D.McIntosh et al.:
"Remote Maintenance in a Large Separation Plant",
Proc. of 14th Conf. Remote Syst. Technology,
S. 196-202, (1966, USA)
- /3/ J.M.McKibben et al.:
"The Savannah River Purex Plant - 25 Years of
Successfull Remote Operation",
Proc. of 27th Conf. Remote Syst. Technol.,
S. 173-177, (1979, USA)
- /4/ M. Selig:
"Remote Maintenance Techniques in a Radioactive
Vitrification Plant",
Proc. of 31th Conf. Remote Syst. Technol.,
Vol. 1, (1983, USA)

MÖGLICHKEITEN ZUR ABFALLMINIMIERUNG UND ZU
VEREINFACHUNGEN IM WIEDERAUFARBEITUNGSPROZESS

H. Schmieder

Kernforschungszentrum Karlsruhe

Seit den siebziger Jahren werden im Kernforschungszentrum Karlsruhe Entwicklungsarbeiten durchgeführt, deren Ziele man in einem Satz zusammenfassen kann: Reduzierung des Abfallvolumens und Vereinfachung des Wiederaufbereitungsverfahrens.

Ich möchte Ihnen im ersten Teil des Vortrages über den Stand dieser Arbeiten berichten und möchte im zweiten Teil über weitere Möglichkeiten zur Verfahrensvereinfachung berichten. Alle Verfahren basieren auf Elektrochemie. Das zum Allgemeinen.

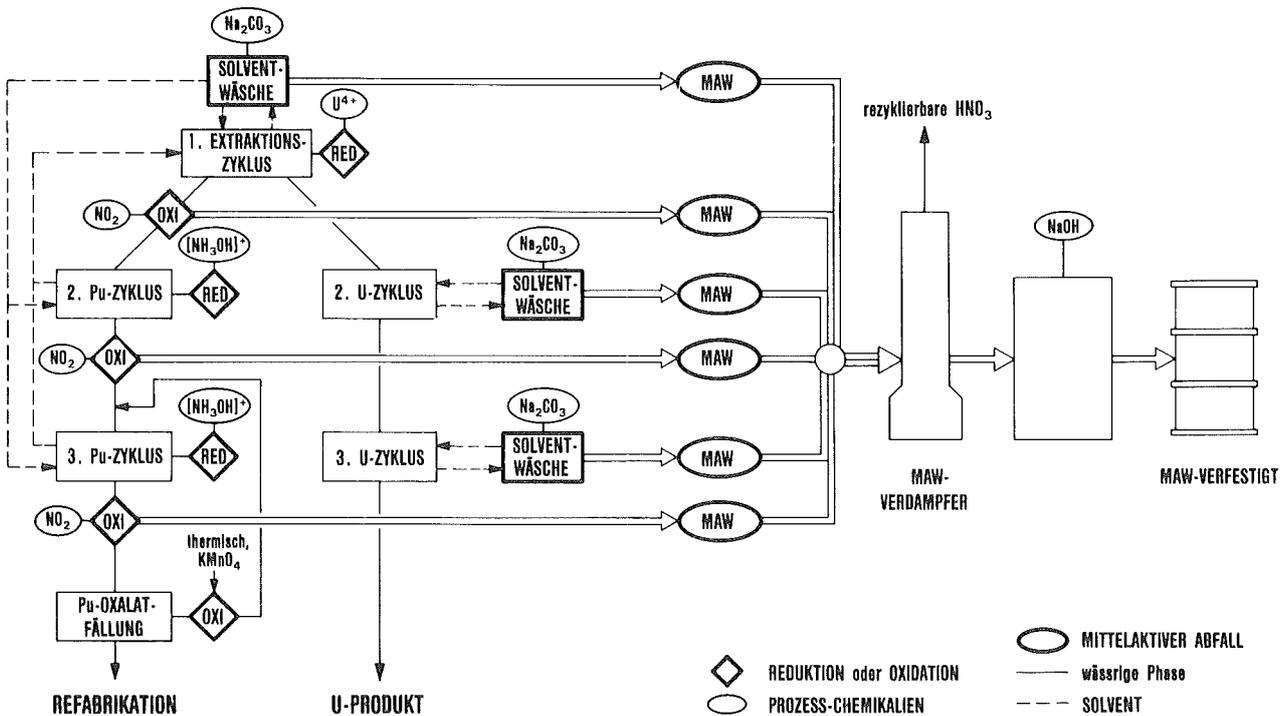
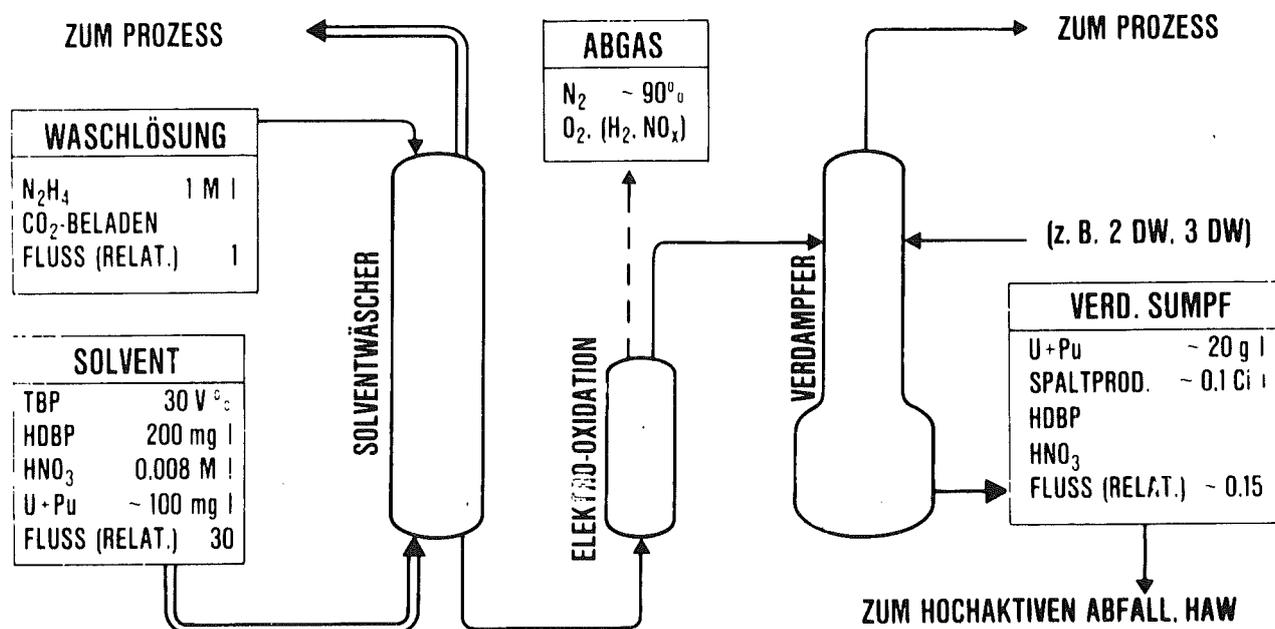


Abb. 1 BLOCKSCHEMA DES PUREX-PROZESSES MIT REDOX-SCHRITTEN, CHEMIKALIENZUGABE UND MITTELAKTIVEN ABFALLQUELLEN

Das erste Bild zeigt sehr vereinfacht ein Verfahrensschema des traditionellen Purex-Prozesses mit den Reduktions- und Oxidationsschritten sowie den Abfallquellen. Die größte Menge mittelaktiven Abfalles, der kontinuierlich anfällt, entsteht bei der Solventwäsche, wenn Natronlauge bzw. Natriumkarbonat als Waschlösung verwendet wird.

Nun zum ersten neuen Verfahren. Es ist die Hydrazinwäsche. Ziel ist es, das Natriumnitrat, was aus dem Natriumkarbonat entsteht, das den mittelaktiven Abfall am Ende bildet und das verfestigt werden muß, zu ersetzen. Das nächste Bild zeigt das Verfahren im Blockschema.



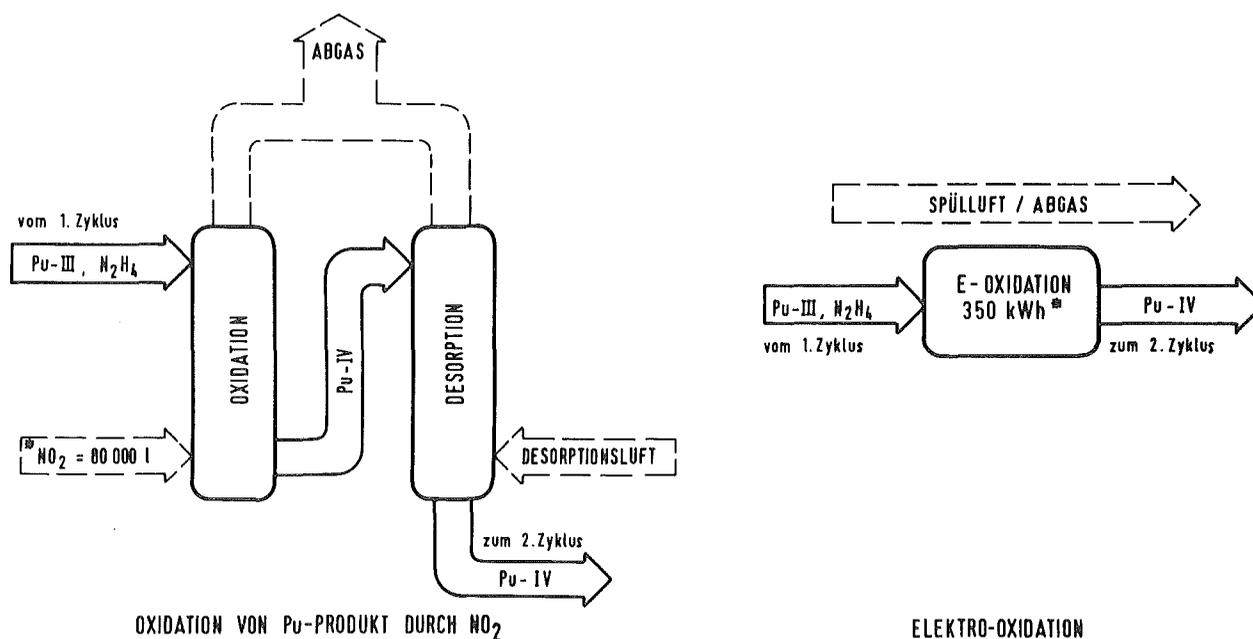
IHCH

EXTRAKTIONSMITTELWÄSCHE MIT HYDRAZIN

Wir ersetzen das Natriumkarbonat durch Hydrazinkarbonat, das dann nach dem Solventwäscher, und das ist der entscheidende Punkt, sehr einfach durch

Elektrooxidation in gasförmige Produkte, nämlich hauptsächlich Stickstoff und ganz geringe Mengen Stickoxide zersetzt und an die Atmosphäre abgegeben werden kann. Die verbrauchte Waschlösung wird im Verdampfer hochaufkonzentriert und kann dem HAW zugeschlagen werden. Zum Stand des Verfahrens: Wir haben eine Reihe Laboruntersuchungen zu den chemischen Gleichgewichten und zur Kinetik der Wäsche mit Hydrazin durchgeführt und herausgefunden, daß die Dekontaminationsfaktoren für Spaltprodukte und für Dibutylphosphat wie auch die Kinetik des Verfahrens mit Hydrazinkarbonat vergleichbar ist mit dem Natriumkarbonat-Verfahren. Eine Reihe "heißer" Experimente in einer Miniaturextraktionsanlage mit Solvent aus der WAK und Solvent aus Milli-Anlage haben diese Laboruntersuchungen bestätigt. Es ist geplant das Verfahren in der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe zu demonstrieren.

Die Elektrooxidation wird nicht nur für die Zerstörung des Hydrazins aus der Solventwäsche verwendet, sondern wird auch verwendet für die Oxidation des Plutonium-III zwischen den Zyklen des Purex-Prozesses. Dort wird als Stabilisator, oder besser gesagt als Nitritfänger, Hydrazin zugegeben, deshalb kann ich beide Verfahren, die Zerstörung des Hydrazins in der verbrauchten Waschlösung und die Zwischenzyklusoxidation der Plutonium-Produktlösung zusammen behandeln. Die Vorteile des elektrochemischen Verfahrens zur Oxidation von Hydrazin bzw. Plutonium zeigen sich im Vergleich zum chemischen Verfahren (siehe folgendes Schema).



VERGLEICH DER OXIDATIONSPROZESSE FÜR DAS Pu-PRODUKT

Brennstoff : 20% Pu ; NO₂ / N₂H₄ = 5 ; Zahlenwerte : bezogen auf 1/Brennstoff

* Im Fall der reduktiven Plutoniumrückwäsche in den Reinigungszyklen ist die gleiche Reduktionsmittelmenge zusätzlich erforderlich

In der folgenden Tabelle sind die wesentlichen Ergebnisse der Laboruntersuchungen zusammengefaßt.

Ergebnisse zur Hydrazin- und Pu(III)-Oxidation



**Umsatzbeteiligung der Kathodenreaktion (bis zu 50%)
durch kathodisch gebildete salpetrige Säure:
 $2\text{HNO}_2 + \text{N}_2\text{H}_5^+ = \text{N}_2 + \text{N}_2\text{O} + 2\text{H}_2\text{O} + \text{H}_3\text{O}^+$**

Durchschnittlicher Strombedarf: 80-90 Ah/Mol Hydrazin

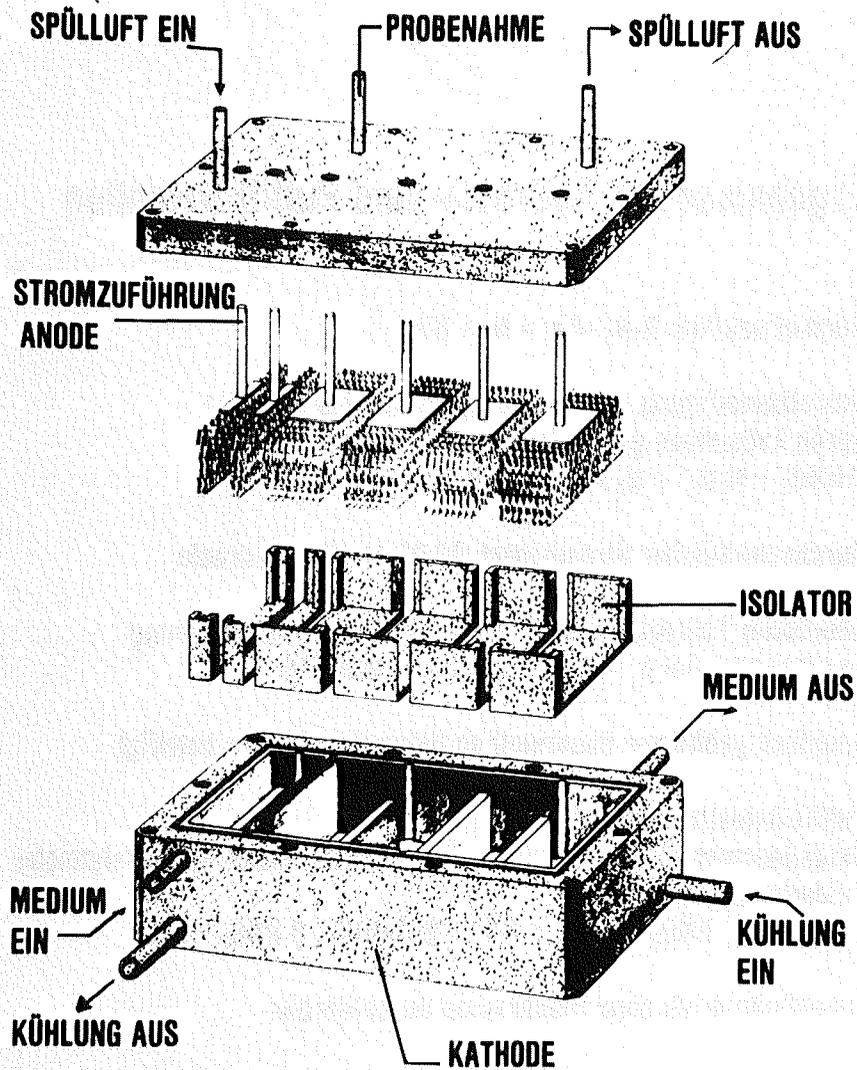
**Anodische Teilreaktion zeigt Wechsel der Reaktionsordnung
von 0 nach 1 bei $c_g = f(i) / B \cong 0,2 \text{ cm/min } (f(i))$**

Anodisch gebildeter Sauerstoff an Hydrazinoxidation beteiligt

**Pu(III)-Oxidation: Verlauf = f (H⁺)
Oxidationsweg elektrochemisch und chemisch durch autokatalytische
Oxidation durch HNO₂:
 $2\text{Pu(III)} + 2\text{HNO}_2 + \text{HNO}_3 + 2\text{H}^+ = 2\text{Pu(IV)} + 3\text{HNO}_2 + \text{H}_2\text{O}$**

Durchflußbetrieb ohne Diaphragma durchführbar

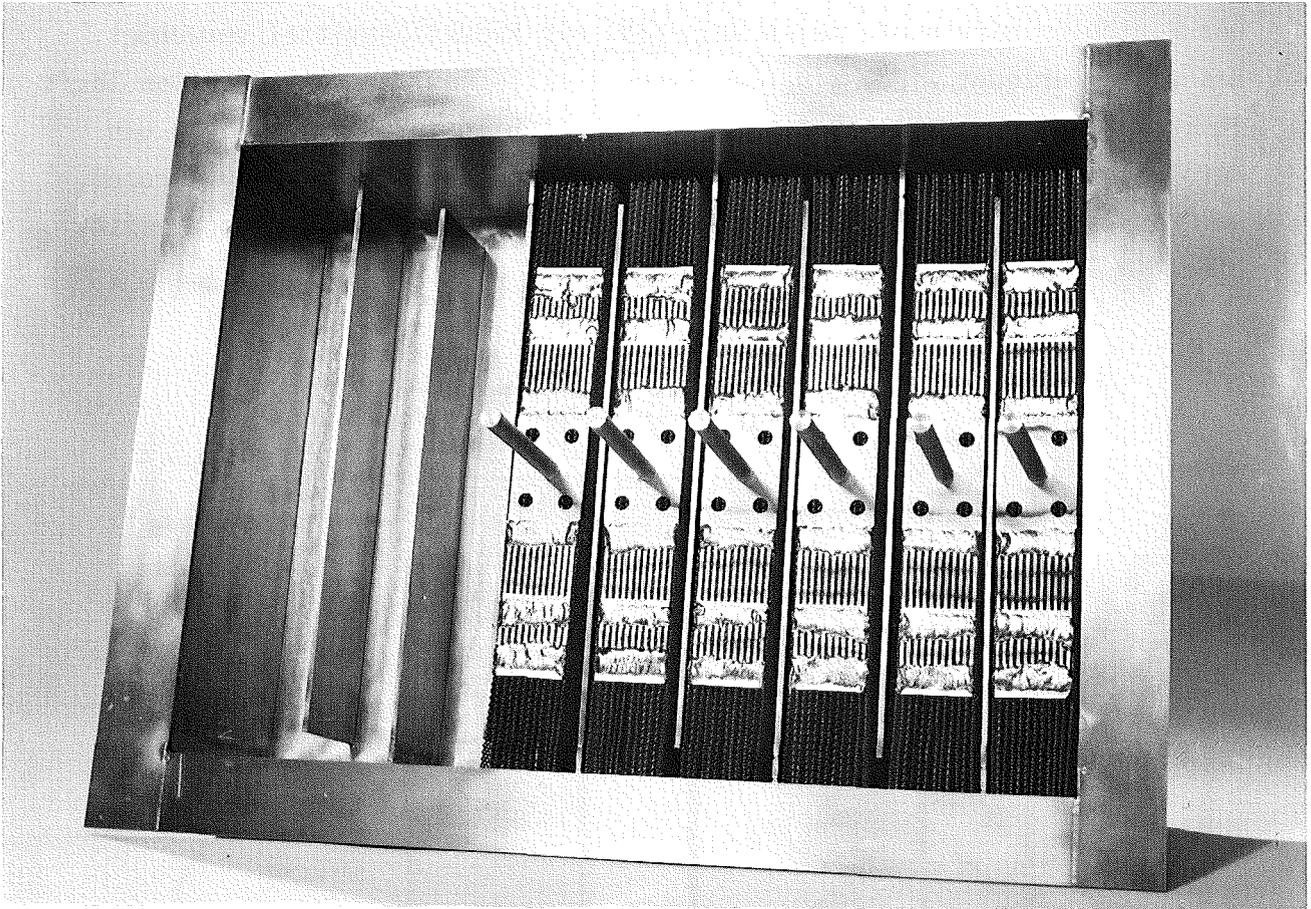
Im nächsten Bild sehen Sie das Konstruktionsprinzip der Zellen. Der Elektrolyt wird mäanderförmig durch eine Flachzelle geführt. Das Gas entweicht nach oben. Kathodenmaterial und Gehäusematerial ist Titan. Als Anode verwenden wir platinisiertes Material, hauptsächlich Tantal in Streckblechform. Wir kommen mit einer Luftkühlung aus. Die Wasserkühlung wird nicht benötigt.



ELEKTRO-OXIDATIONSZELLE

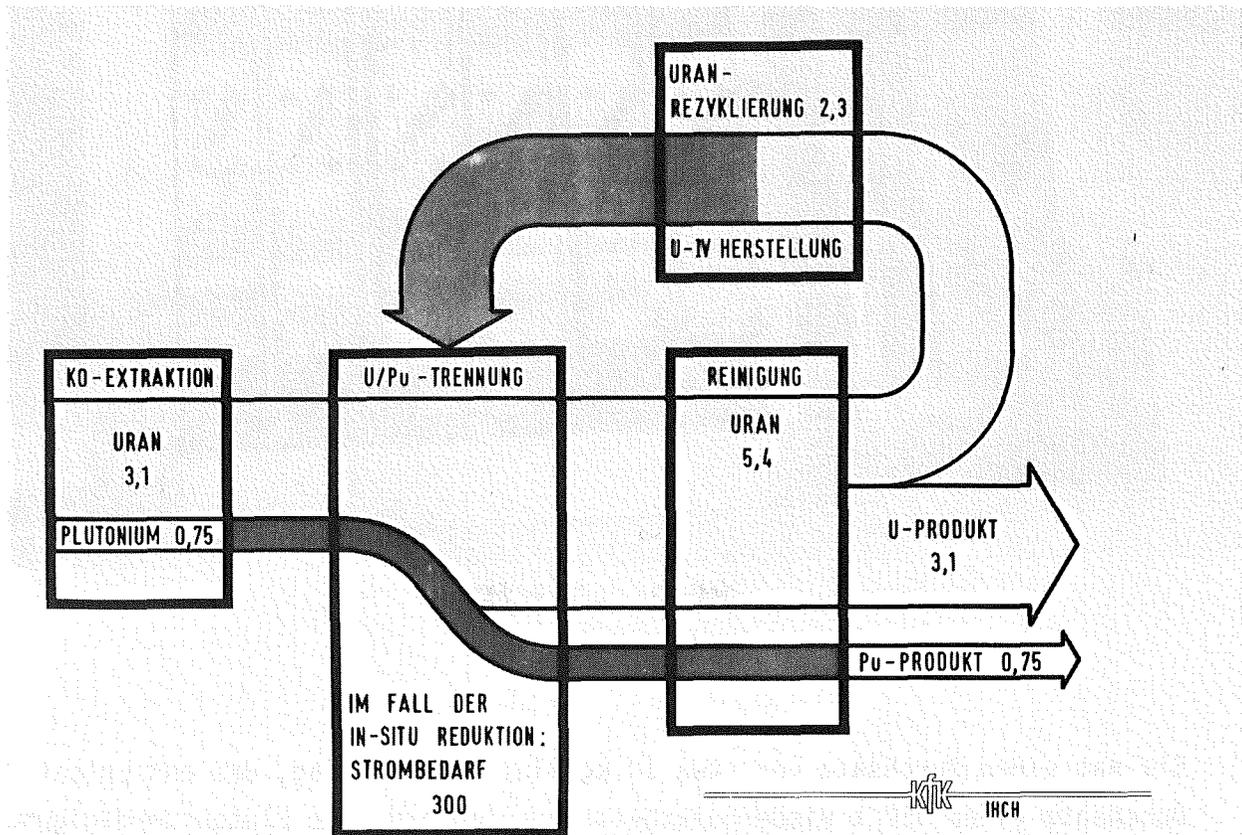
INCH

Das nächste Bild zeigt eine Zelle (ungefähr 60 cm lang) wie wir sie in unserem Plutoniumteststand PUTE verwenden.



Sie hat einen Durchsatz von etwa 10 kg Plutonium pro Tag, das entspricht dem Durchsatz einer 350 t Wiederaufarbeitungsanlage für die Plutoniumreinigungszyklen. Die Zellen existieren in zwei Ausführungen: aus Hafnium und aus Titan. Auch Hafnium ist als Kathodenmaterial geeignet. Wir verwenden Hafnium, weil wir es als Neutronenabsorber zur Vergiftung von Pulscolonnen vorgeschlagen haben und es unter realistischen Bedingungen demonstrieren wollen.

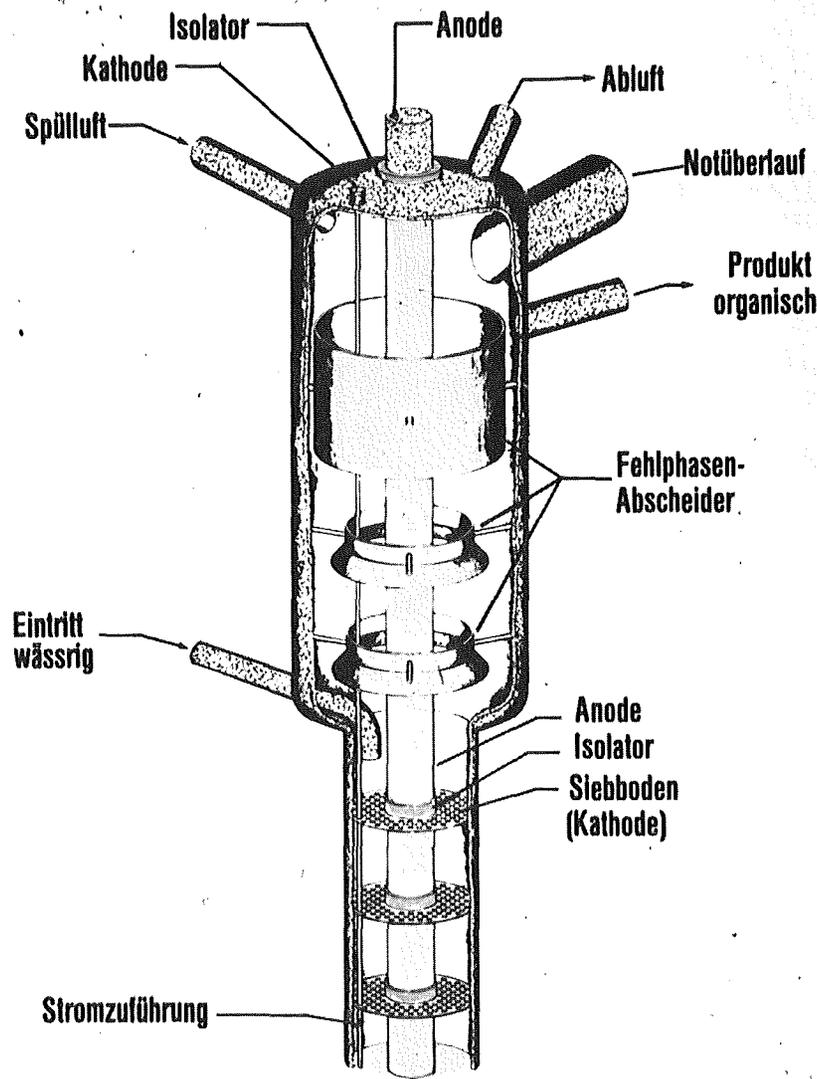
Ich komme nun zur Elektroreduktion. Sie wissen, zur Abtrennung von Uran und Plutonium wird heute meist Uran-(IV) als Reduktionsmittel verwendet, das extern erzeugt wird. Wir reduzieren elektrochemisch. Die Reaktion läuft im Extraktionsapparat selbst ab. Das nächste Bild zeigt schematisch den Vergleich zwischen dem elektrochemischen Prozeß und dem Uran-(IV)-Prozeß, wo Uran-(IV) als Reduktionsmittel extern produziert und dann eingespeist wird.



BEDARF AN EXTERN HERGESTELTLEM URAN-(IV) FÜR DIE BRÜTERBRENNSTOFF-AUFARBEITUNG
BRENNSTOFF : 20% Pu ; U-(IV)/Pu - 3; ZAHLENWERTE : kMol ODER kWh PRO TONNE BRENNSTOFF

Im Beispiel wurde ein Brüterbrennstoff mit 20% Plutonium angenommen. Das Entscheidende ist, daß Sie sehen, es muß mehr als 50% des Brennstoffurans als Uran-(IV) rezykliert werden, um eine komplette Reduktion zu bekommen. Wird dagegen im Extraktionsapparat elektrochemisch reduziert, benötigt man pro t Brennstoff etwa nur 300 Kilowattstunden.

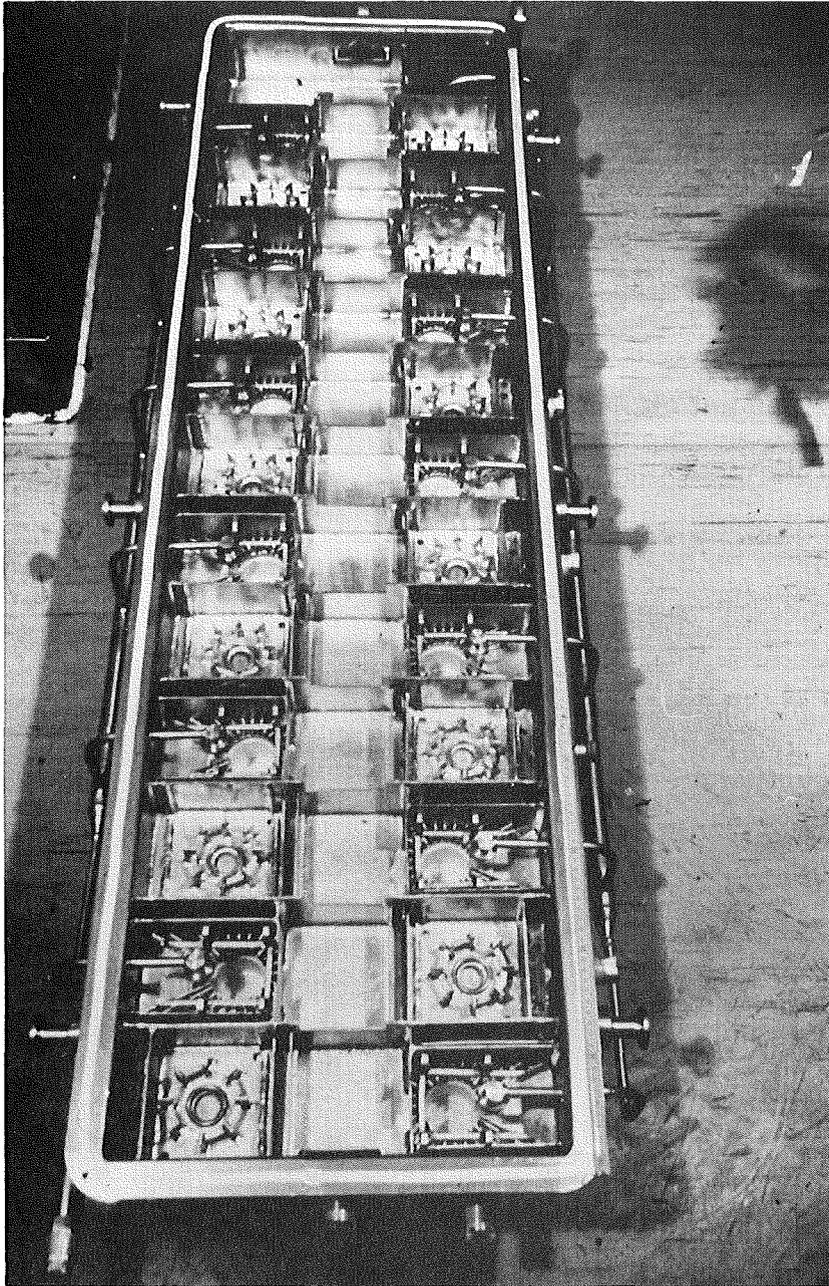
Das nächste Bild zeigt das Konstruktionsprinzip einer Pulskolonne mit Elektroreduktion. Das Kolonnenrohr und die Siebböden sind aus Titan und wirken als Kathode. Wir verwenden kein Diaphragma, der Zentralstab arbeitet als Anode und ist aus platinisiertem Tantal hergestellt.



Elektrolytische, gepulste Siebbodenkolonne, (ELKE)

IHCH

Das nächste Bild zeigt eine Fotografie des Mischabsetzers wie er im zweiten Zyklus der WAK eingebaut ist. Er ist 12-stufig.



Der Mischabsetzer arbeitet seit etwa 1 1/2 Betriebsjahren in der WAK und hat das Äquivalent von 40 t Brennstoff durchgesetzt.

Die WAK plant auch den Uran-(IV)-Prozeß im 1. Zyklus durch einen Elektroreduktionsmischabsetzer zu ersetzen. Er ist fertiggestellt und wird im Moment mit Uran getestet.

In der nächsten Tabelle habe ich versucht, sehr stark vereinfacht, die Trennergebnisse mit E-Mischabsetzern und der Pulskolonne zusammenzustellen.

Trennergebnisse mit den Elektroreduktionsmischabsetzern (EMMA) und der Elektroreduktionspulskolonne (ELKE)

	org. Speiselösung U/Pu	Pu-Konzentrierungs- faktor	Trennung [Pu] - Speiselsg. [Pu] - Raffinat	NTS***	$I/I_{\text{theor.}}$ für Pu	Zellspannung V
MILLI-EMMA ~ 0,1 kg Pu/d	10 - 100	7,1 - 9,3	$3 \cdot 10^2 - 3 \cdot 10^3$	~ 4	≥ 5	2,8 - 8
	0,2 - 0,3	1 - 3,5	$10^3 - 10^5$	~ 10	2,5 - 5	2 - 6
WAK*-EMMA ~ 2,5 kg Pu/d	0,2 - 0,3	1,7 - 2,7	$10^3 - 10^5$	~ 11	2 - 5	2 - 8
ELKE** ~ 10 kg Pu/d	0,06 - 0,8	2 - 4,3	$2 \cdot 10^3 - 10^6$	~ 11	3,5 - 5	2 - 3

* Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe

** Durchsatz ≥ 350 t/d Wiederaufarbeitungsanlage für Pu-Feinreinigung

*** Zahl der theoretischen Stufen für U (VI)-Extraktion

Während im Mischabsetzer die Trenneffektivität durch unvollständige Reduktion in den einzelnen Stufen limitiert wird (autokatalytische Oxidation in der abgetrennten organischen Phase), ist die Trennung in der Pulskolonne durch die Fluiddynamik begrenzt.

Das zweite, was wir nachweisen konnten und schon durch Modellrechnungen vermutet hatten, ist, daß der Elektroreduktionsprozeß in Pulskolonnen nicht sensitiv ist gegenüber dem Parameter Hydrazinkonzentration, weil wir den Prozeß unter bestimmten Bedingungen sogar ohne Hydrazin betreiben konnten. Sie wissen, daß bei dem Uran-(IV)-Prozeß hin und wieder in verschiedenen Anlagen

plötzliche Reoxidationen aufgetreten sind, die dann letztlich zum "Umkippen" des Extraktors geführt haben. Eine Ursache dabei war der Mangel an Hydrazin im Extraktor.

Wir sind heute in der Lage über ein mathematisches Modell den doch sehr komplexen Prozeß mit angekoppelten chemischen Reaktionen sehr gut zu verstehen. Die nächste Tabelle zeigt den Modellaufbau für die Absetzkammer eines Mischabsetzers.

Aufbau des Modells, Absetzkammer

Vorgang	Rategleichung, $\frac{d[\text{Pu(IV)}]}{dt} =$	Konstante
1-aq. Phase		
Konvektion	$+ \frac{Q_a}{V_a} ([\text{Pu(IV)}]_{aF} - [\text{Pu(IV)}]_a)$	
Reduktion, U(IV)	$-k_{1a} [\text{Pu(IV)}]_a [\text{U(IV)}]_a / ([\text{H}^+] + K_{HP}) ([\text{H}^+] + K_{HU})$	$k_{1a} = 29900$
Reduktion, N_2H_5^+ , katal.	$-k_{2a}^* [\text{Pu(IV)}]_a [\text{N}_2\text{H}_5^+]_a / ([\text{H}^+] + K_{HP})$	$k_{2a}^* = k_{2a} + 0,22 \Omega K$; s. 5.4
Oxidation, HNO_2	$-k_{3a} [\text{Pu(III)}]_a [\text{HNO}_2]_a ([\text{H}^+] - 0,4) [\text{NO}_3^-]$	$k_{3a} = 208$
Elektroreduktion	$-\beta_R [\text{Pu(IV)}]_a \cdot \Omega k$	$\beta_R = 0,1$
2-org. Phase		
Konvektion	$+ \frac{Q_o}{V_o} ([\text{Pu(IV)}]_{oF} - [\text{Pu(IV)}]_o)$	
Reduktion, U(IV)	$-k_{1o} [\text{Pu(IV)}]_o [\text{U(IV)}]_o / ([\text{H}^+]_o + K_{HP}) ([\text{H}^+]_o + K_{HU})$	$k_{1o} = 0,01$ $k_{1a} = 2,99$
Oxidation, HNO_2	$+ k_{3o} [\text{Pu(III)}]_o [\text{HNO}_2]_o$	$k_{3o} = \exp(7,28 \text{H}^+ + 5,83)$

Auf der Basis dieses Modells, das Herr Petrich bei der letzten Internationalen Solventextraktionskonferenz vorgetragen hat, ist es uns auch möglich die verschiedenen Prozesse, den alten Eisen-(II)-Prozeß zur Uran-Plutonium-Trennung, den Hydroxylammoniumnitrat-Prozeß, den Uran-(IV)-Prozeß und den Elektroreduktionsprozeß zu bewerten und miteinander zu vergleichen.

Das Ergebnis ist in der nächsten Tabelle zusammengefaßt.

PROCESS COMPARISON				
	Fe (II)	HAN	U (IV)	Electro
separation efficiency	++	+	++	++
process stability	++	++	-	++
Pu concentration factor	?	-	+	++
<u>reductant feed</u> Pu (IV) feed	--	-	-	++
reductant recycle <u>or</u> disposal	--	+	++	++
<u>stabilizer feed</u> Pu (IV) feed	--	-	--	+
Pu-HDBP strip	-	--	++	++
operating temperature	+	--	+	+
corrosion problems	--	++	++	++
reductant + equipment costs	-	-	-	+
waste costs	--	+	++	++
+ favorable conditions		- unfavorable conditions		

Wir bearbeiten auch, wenn auch in mit sehr viel kleinerem Aufwand, die elektrochemische Zerstörung von überschüssiger Salpetersäure. Es ist uns bisher jedoch nicht gelungen, den optimalen elektrochemischen Katalysator zu finden, der das gewünschte Produkt, nämlich Stickstoff bzw. N_2O liefert.

Wir haben ein weiteres Verfahren erfolgreich abgeschlossen, die anodische Oxidation von Oxalsäure in den Mutterlaugen der Plutoniumoxalatfällung. Die wesentliche Schwierigkeit war, in diesem Fall eine geeignete Anode zu finden.

Im nächsten Bild wird im Blockschema die Vereinfachung des PUREX-Prozesses bei Anwendung der neuen Verfahrensschritte im Vergleich mit dem herkömmlichen Prozeß im ersten Bild deutlich.

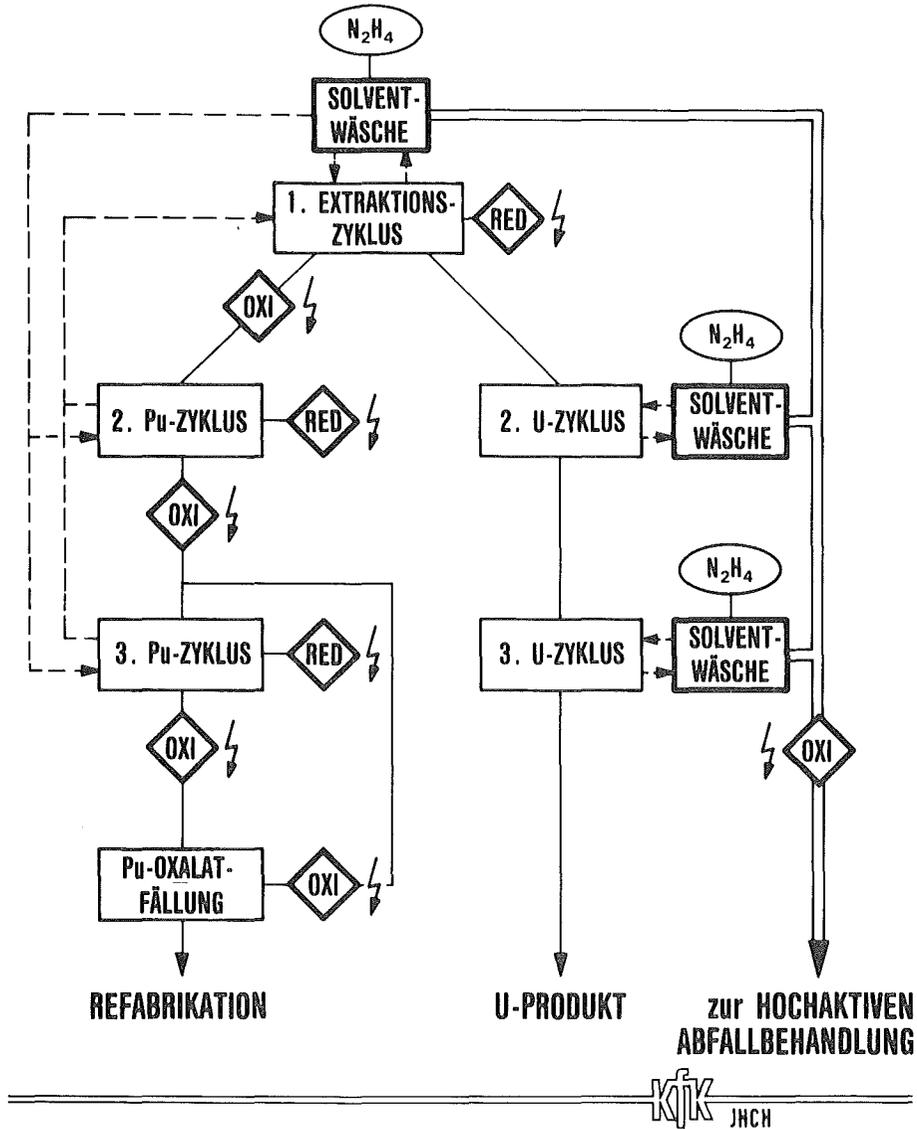


Abb. 4 BLOCKSCHEMA DES PUREX-PROZESSES MIT DEN NEUENTWICKELTEN VERFAHRENSSCHITTEN

Lassen Sie mich nun auf zwei neue Möglichkeiten, die wir im Institut diskutieren und an denen wir arbeiten möchten, eingehen, die der weiteren Vereinfachung des Purex-Prozesses dienen sollen. Wie Sie wissen, ist Wiederaufarbeitung, insbesondere Schnellbrüterwiederaufarbeitung, heute noch sehr teuer. Das ist eine Herausforderung, den Prozeß weiter zu vereinfachen und daraus leitet sich die Frage ab: Braucht man wirklich drei Zyklen?

In der nächsten Tabelle sind die erreichbaren und erforderlichen Dekontaminationsfaktoren für Spaltprodukte und Plutonium bei einem und sieben Jahren Kühlzeit für LWR-Brennstoff zusammengefaßt. Es wird deutlich, daß bei bestimmungsgemäßem Betrieb nach dem ersten Zyklus für längere Kühlzeiten für die Spaltprodukte nur noch ein relativ kleiner zusätzlicher Dekontaminationsfaktor erforderlich ist. Deshalb besteht eine gute Chance die Zyklenzahl im Purex-Prozeß zu reduzieren.

Kühlzeit a	Erforderlicher, relevanter Spaltprod.-DF		Erreichte Spaltprod.-DF's im 1. Zyklus		Erforderlicher Pu-DF	Erreichter Pu-DF im 1. Zyklus
	U	Pu	U*	Pu*	U	U**
1	$7,5 \cdot 10^5$ (Zr/Nb;Ru)	$9,8 \cdot 10^5$ (Zr/Nb;Ru)	$10^3 \cdot 5 \cdot 10^3$	$10^3 \cdot 5 \cdot 10^3$	$9 \cdot 10^5$	$10^3 \cdot 10^4$
7	$9,7 \cdot 10^3$ (Ru)	$1,1 \cdot 10^4$ (Ru)	$5 \cdot 10^3$	$5 \cdot 10^3$		

* Mittelwert aus verschiedenen Anlagen

** mit Elektroreduktion
in einfacher Pulskolonne bei $\alpha/a = 2,5$



Erforderliche und erreichbare Dekontaminationsfaktoren (LWR-Brennstoff, 33000 MWd/t)

Will man Wege finden die Trenneffektivität zu verbessern, muß zuerst die Frage nach der Natur und Ursache der Kontamination beantwortet werden. In der nächsten Tabelle habe ich in einem Schema versucht Natur und Ursachen der Kontamination zusammenzufassen und Maßnahmen zur Verbesserung der Trenneffektivität aufzulisten.

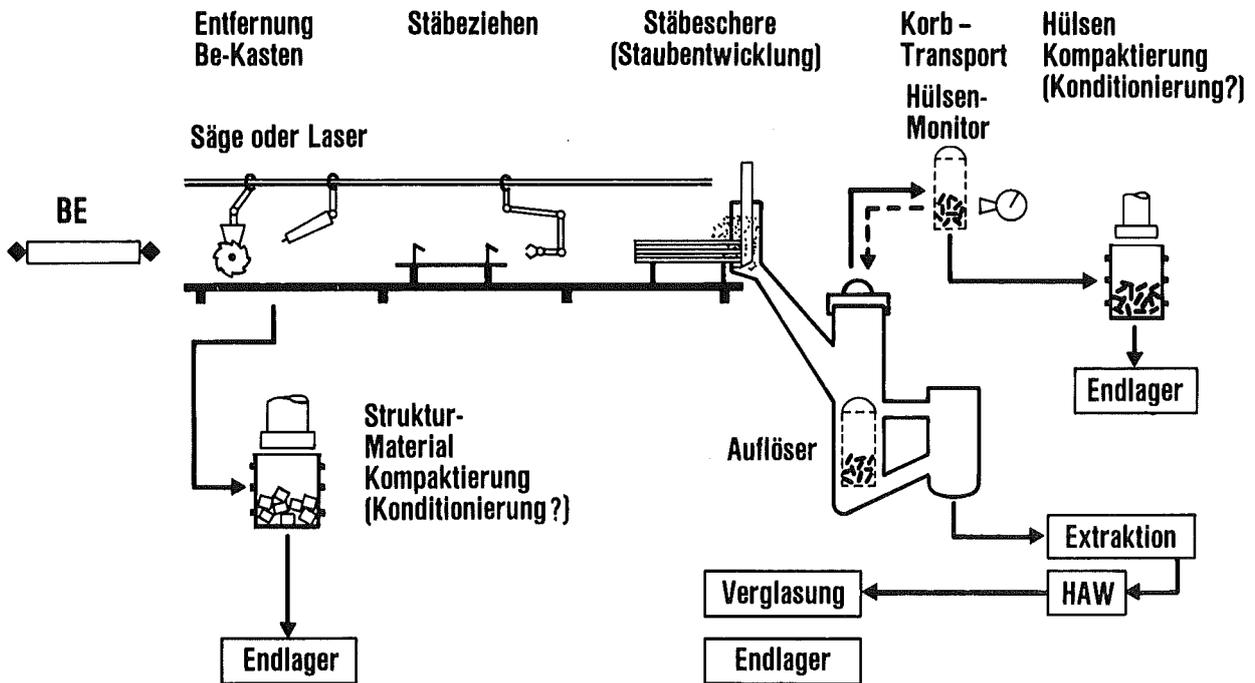
	Natur der Kontamination	Ursache	Gegenmaßnahme
Spaltprodukte	physikalisch	<ul style="list-style-type: none"> — stabile Suspension durch ungenügende Feedklärung — Tröpfchenverschleppung 	<ul style="list-style-type: none"> — Feedfeinklämung ($\leq 1 \mu$) — Fehlphasenabscheider
	chemisch	Gleichgewichte in der organischen und wässrigen Phase	<ul style="list-style-type: none"> — Optimierung der bekannten Maßnahmen: <ul style="list-style-type: none"> — Temperatur — (HNO_3) — Sättigung — Isotopenverdünnung — Veränderte Verfahrensweise für die Wäscher
Plutonium	physikalisch	Rückvermischung, insbesondere in Pulskolonnen	Zweiteilung der Kolonne
	chemisch	Ungenügende Reduktion bzw. Reoxidation	Elektroreduktionsverfahren



Maßnahmen zur Verbesserung der Dekontaminationsfaktoren

Lassen Sie mich zum Abschluß auf eine mögliche Verfahrensvereinfachung eingehen, die die mechanische Eingangsstufe und die Auflösung bei der Brüterbrennstoffwiederaufarbeitung betrifft. Beide Verfahrensschritte sind, so wie heute geplant, verfahrenstechnisch aufwendig und nicht problemlos.

Im nächsten Bild sind die Verfahrensschritte schematisch dargestellt.



Geplantes mech. Head-End mit Auflöser für SBR-BE

Der Gedanke zur Vereinfachung besteht nun darin, mit Hilfe anodischer Oxidation das Struktur- und/oder Hüllmaterial gemeinsam mit dem Brennstoff aufzulösen.

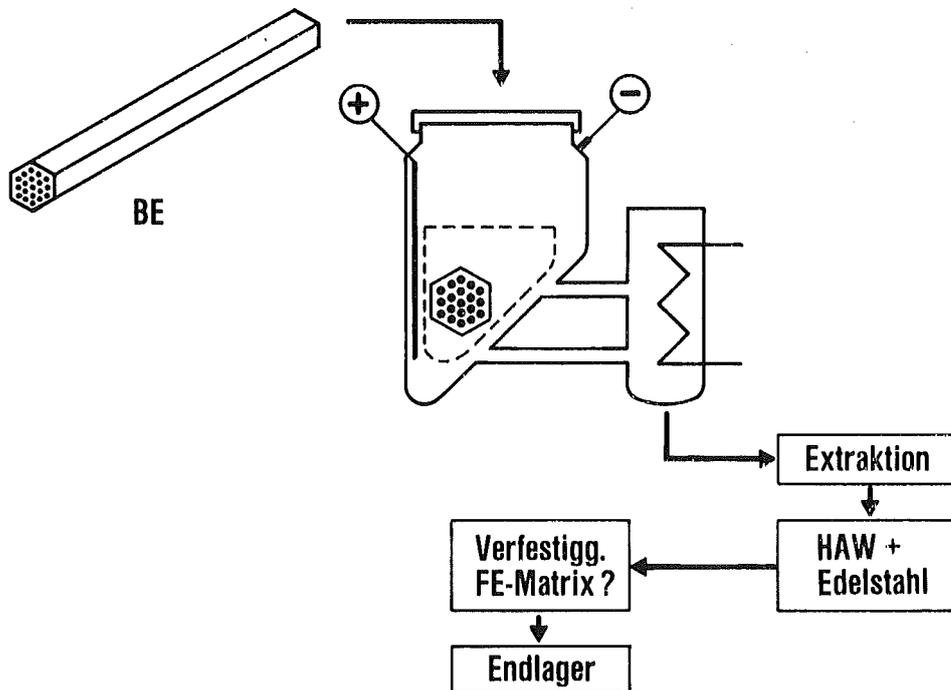
Die Merkmale einer solchen Verfahrensweise sind in der folgenden Tabelle zusammengefaßt.

- Das Verfahren ist technisch in den USA erprobt. Es wird jedoch nur für „Exoten-Brennstoff“ (Cermet, MTR-Fuel etc.) angewendet.
- Edelstahl löst sich anodisch in HNO_3 besonders gut auf.
- Das BE muß nicht direkt kontaktiert werden. Es kann der Effekt der Zwischenleiterkorrosion (bipolare Zelle) ausgenützt werden. → F + E
- Eine Störung der Extraktion wird durch den hohen Salzgehalt nicht erwartet. (F + E)
- Vermutlich sind die heute vorgesehenen Gläser zur HAW-Verfestigung nicht geeignet. Eisen wird zum Hauptbestandteil des Verfestigungsproduktes. → F + E



Alternative zum mechanischen Head-End – Elektroauflösung von Strukturmaterial, Hülsen und Brennstoff

Die nächste Abbildung soll schematisch die Vereinfachung der Eingangsstufe veranschaulichen, was im Vergleich mit dem vorletzten Bild deutlich wird.



Gemeinsame Auflösung von Strukturmaterial und Brennstoff durch anodische Oxidation für SBR-Brennelemente

Die Nachteile sind hauptsächlich in dem notwendigen F+E Aufwand zu sehen, wobei sich dieser vermutlich auf das Verfestigungsprodukt, das große Mengen Eisen und Legierungsbestandteile aufnehmen muß, konzentriert.

Nachteile und Vorteile der Elektroauflösung sind in der letzten Tabelle gegenübergestellt.

Vorteile

- Vermeidung der teilweise komplizierten, mechanischen Verfahrensschritte im hochaktiven Bereich.
- Vermeidung von festen, hochaktiven Abfällen und deren Konditionierung.
- keine Bildung von hochaktivem Staub.
- kein Hülsenmanagement, kein Hülsenmonitor.
- geringerer Platzbedarf

Nachteile

- F + E Aufwand beträchtlich:
 - Verfestigungsprodukt? (Fe-Matrix)
 - Apparateentwicklung
 - (Extraktionsstudien)
 - Säurerezyklierung
- Erhöhtes Produktvolumen?

Energiebedarf

SNR 300 BE	:	~ 1,6t Edelstahl/t Brennstoff
Installiert	:	15 000 - 20 000 Amp.
Energiebedarf	:	~ 5 000 kWh/BE
Lösedauer	:	10 - 20 h



Potential der E-Auflösung

Ich hoffe, es ist mir gelungen, Ihnen aufzuzeigen, daß es Möglichkeiten gibt, den Wiederaufarbeitungsprozeß zu vereinfachen, zu verbessern und vor allen Dingen billiger zu machen. Woran es fehlt oder zumindest mangelt, sind "heiße" Arbeitsplätze, in denen die Verfahren demonstriert werden können.

DAS MECHANISCHE HEADEND DER
BRÜTERBRENNELEMENT-WIEDERAUFARBEITUNG

H. Lahr, W. Köhler

Deutsche Gesellschaft für Wiederaufarbeitung
von Kernbrennstoffen mbH, Hannover

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH

1. Einleitung

Brüterbrennelemente unterscheiden sich vor allem im Aufbau, Abbrand und in der Brennstoffzusammensetzung von Leichtwasserreaktor-Brennelementen.

In der vorliegenden Arbeit sollen die Auswirkungen dieser Unterschiede auf den mechanischen Teil des Headends betrachtet werden. Dieser Bereich der Wiederaufarbeitung ist von besonderer Bedeutung, da hier der gravierenden Andersartigkeit der Brüterbrennelement-Geometrie begegnet und damit die anschließende Durchführung des PUREX-Prozesses ermöglicht werden muß.

Schwerpunkt dieser Arbeit ist das Herausstellen evtl. noch notwendiger Entwicklungsarbeiten; auf Details der BE-Zerlegung wird nicht näher eingegangen, sie sind Thema der vorhergehenden Vorträge.

2. Definition Headend

Unter der Bezeichnung "Headend" versteht man den Eingangsteil einer Wiederaufarbeitungsanlage; im allgemeinen reicht dieser Bereich vom Brennelementempfang bis zum Auflöser.

In der eigentlichen Headend-Zelle werden folgende Aufgaben durchgeführt:

- Die für den Reaktorbetrieb notwendigen Bauteile werden von den Brennelementen (BE) entfernt
- Der Brenn- und Brutstoff wird für den chemischen Teil der Wiederaufarbeitung zugänglich gemacht
- Der Brennstoff wird gelöst
- Zum Teil werden die BE-Strukturteile als Abfall konditioniert und das Abgas wird vorgereinigt.

Es gibt verschiedene Headend-Arbeitsweisen:

- Das kombinierte mechanisch-chemische Headend (Chop and leach-Verfahren) wird heute fast ausnahmslos angewendet.
- Beim chemischen Headend werden Strukturmaterial und Brennstoff getrennt gelöst. Obwohl die gesamte Scherenmechanik entfällt, überwiegen die Nachteile: lange Lösezeiten und ein unangenehm zusammengesetzter Abfall (HAW).
Das Verfahren wurde früher in der EUROCHEMIC angewendet.
- Beim elektrochemischen Headend werden Claddingmaterial und Brennstoff in einem Schritt gelöst, die Trennung findet erst im ersten Extraktionszyklus statt. Im Extremfall kann bei diesem Verfahren auch auf die BE-Zerlegung verzichtet werden.

Nachteilig sind auch hier lange Lösezeiten und ein HAW mit den gesamten Claddinganteilen.

Das Verfahren wird in 2 Pilotanlagen in USA angewendet (Idaho, Aiken).

Eine schematische Übersicht der 3 Verfahren ist in Abbildung 1 dargestellt.

Ohne eine detaillierte Wertung vornehmen zu wollen, kann gesagt werden, daß aufgrund der Verbesserungen auf dem Gebiet der Wartungstechnik die einstmaligen Nachteile der mechanischen Verfahren nicht mehr ins Gewicht fallen, d.h. das bewährte Chop- and leach-Verfahren wird auch weiterhin dominieren.

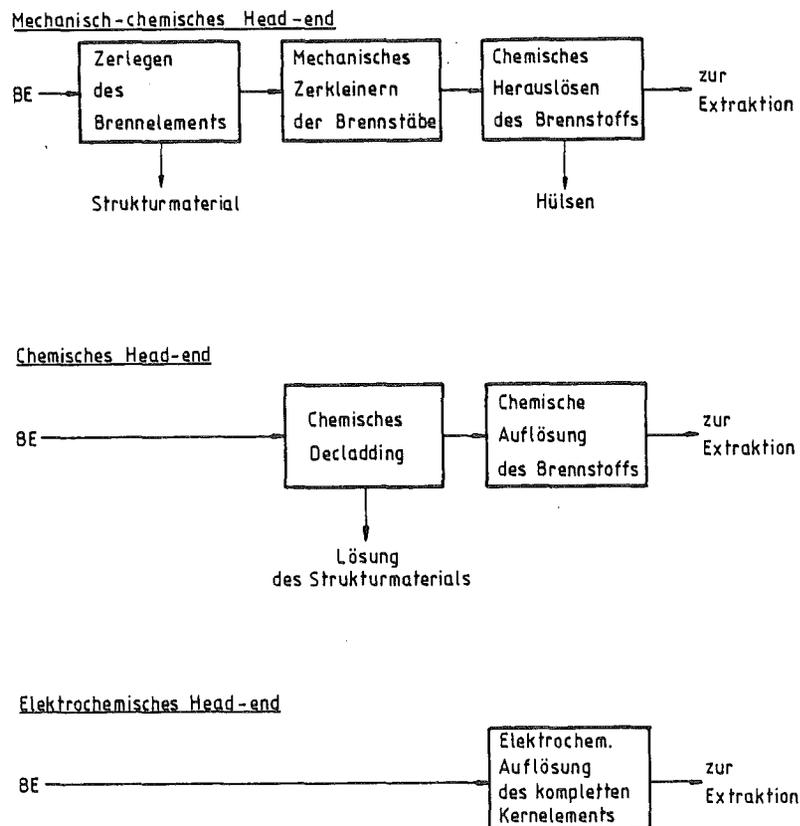


ABB. 1: HEAD-END-PRINZIPIEN

3. Spezielles Headend für Brüterelemente ?

Brüterelemente unterscheiden sich von LWR-Elementen vor allem in

- der Brennstoffzusammensetzung
- der BE-Geometrie und
- der Reaktorverweilzeit

In Abbildung 2 sind die wesentlichen Unterschiede aufgelistet.

Hierzu ist anzumerken, daß für jeweils übliche Abbrände die Nachzerfallsleistung der LWR-Brennelemente aufgrund ihres größeren Brennstoffinhalts bei gleicher Kühlzeit größer ist als die von SBR-Elementen (s. Abbildung 3).

Dieses Verhältnis kehrt sich jedoch durch verschieden lange Kühlzeiten wieder um. Während LWR-Brennelemente nach 7 Jahren aufgearbeitet werden, sollen Brüterelemente zur Erzielung eines wirtschaftlichen Brennstoffkreislaufs nur 1 Jahr gekühlt werden.

Infolge des unterschiedlichen BE-Aufbaus resultiert aus Brüterelementen etwa eine um den Faktor 6 größere Menge an Strukturmaterialabfall als aus LWR-Elementen.

Aufgrund der hier aufgezeigten Unterschiede wird ein Headend für Brüterelemente nicht grundsätzlich anders als für LWR-BE sein, wegen der BE-Geometrie sind jedoch Modifikation speziell im mechanischen Teil notwendig.

	LWR-BE	SBR-BE	Auswirkungen
Brennstoff	UO ₂	UO ₂ / PUO ₂	
Max. Abbrand (core)	50 GWd/t	85 - 140 GWd/t	Wärmeabfuhr
Wärmeleistung (1a)	10 kW/t	25 - 50 kW/t	Wärmeabfuhr
Aktivität (1a)	2,5 MCi/t	5 - 12 MCi/t	Strahlungseffekte
Spaltprodukte	3,5 %	7 - 10 %	Extraktion, Abgas, HAW
Pu-Gehalt (core)	1 %	16 - 30 %	Kritikalität, Löslichkeit
BE-Länge	4,5 - 5 m	2,3 - 5,4 m	Handling, Zerlegung
Stabdurchmesser	10 - 11 mm	6 - 8,5 mm	Zerlegung, Schneiden
Hüllmaterial	Zircaloy	Edelstahl	Scherkraft beim Choppen
Sturkturmateriale	Gitter Skelett —	Gitter, Drahtwendel Hüllkasten Pflaster (Stellite)	Zerlegung, Vereinzeln Zerlegung Co60-Aktivierung, Zerschneiden des Hüllkastens
Kühlmittel	Wasser	Natrium	Na-Verunreinigung, Na-Reaktionen
Strahleneinfluss	—	Materialschwellen	Zerlegung
BE-Gewicht	275-840 kg	100-600 kg	Handling, Zerlegung

ABB. 2: WESENTLICHE UNTERSCHIEDE VON LWR-UND SBR-BE

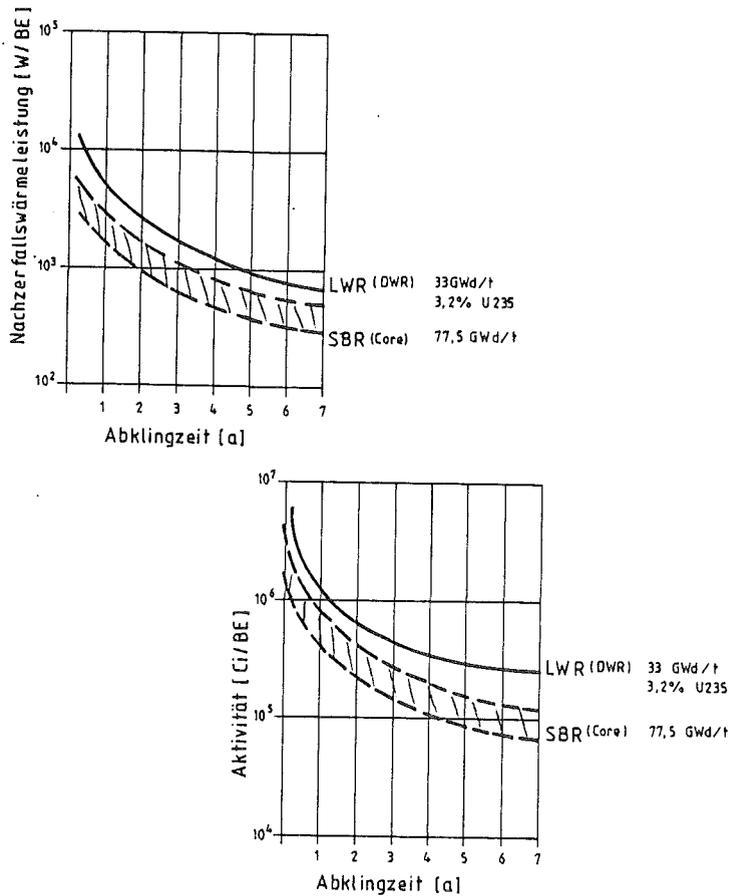


ABB. 3: VERGLEICH VON AKTIVITÄT UND NACHZERFALLSWÄRMELEISTUNG FÜR LWR - UND SBR-BRENNELEMENTE

4. Vorhandenes Know-how

Aus Abbildung 4 wird ersichtlich, daß weltweit eine Reihe von Anlagen vorhanden oder in Planung ist.

B	HERMES	2 jato	Head-end	Mol	Bau
D	MILLI-I	1 kg/d	Laboranlage	Karlsruhe	Konzept Studie
	MILLI-II	5 jato	Pilotanlage	Karlsruhe	
	50 jato	Prototypanlage	
F	AT-1	1 kg/d	Laboranlage	La Hague	Bau Konzept
	TOR/SAP	5 jato	Pilotanlage	Marcoule	
	HAQ/UP-2	10 jato (SBR)	Pilotanlage	La Hague	
	MAR 600	50 jato	Prototypanlage	Marcoule	
GB	PFRRP	5 jato	Pilotanlage	Dounreay	Konzept
	CDFRRP	50 jato	Prototypanlage	Dounreay	
IND	1 kg/d	Laboranlage	Kalpakkam	Planung
I	ITREC	2 jato	Pilotanlage	Trisaglia	Umbaukonzept
JAP	CPF	1 kg/d	Laboranlage	Tokai	Planung
	EDF	20 jato	Mock-up	Tokai	
	FRTF	20 jato	Pilotanlage	Tokai	
USA	IET	100 jato	Mock-up	Oak Ridge	Bau Planung gestoppt
	HEF=DRP	100 jato	Prototypanlage	Oak Ridge	

ABB. 4: INTERNATIONALE SITUATION DER WIEDERAUFARBEITUNG VON SBR-BRENNELEMENTEN

Am weitesten ist die Entwicklung in Frankreich fortgeschritten, die Anlage TOR 1 (neues Headend) wird 1984 in Betrieb gehen. Einzelheiten der französischen Brüterelementbehandlung sind der Abbildung 5 zu entnehmen. Hier wird auch ersichtlich, daß die BE-Zerlegung bereits am Reaktor durchgeführt wird.

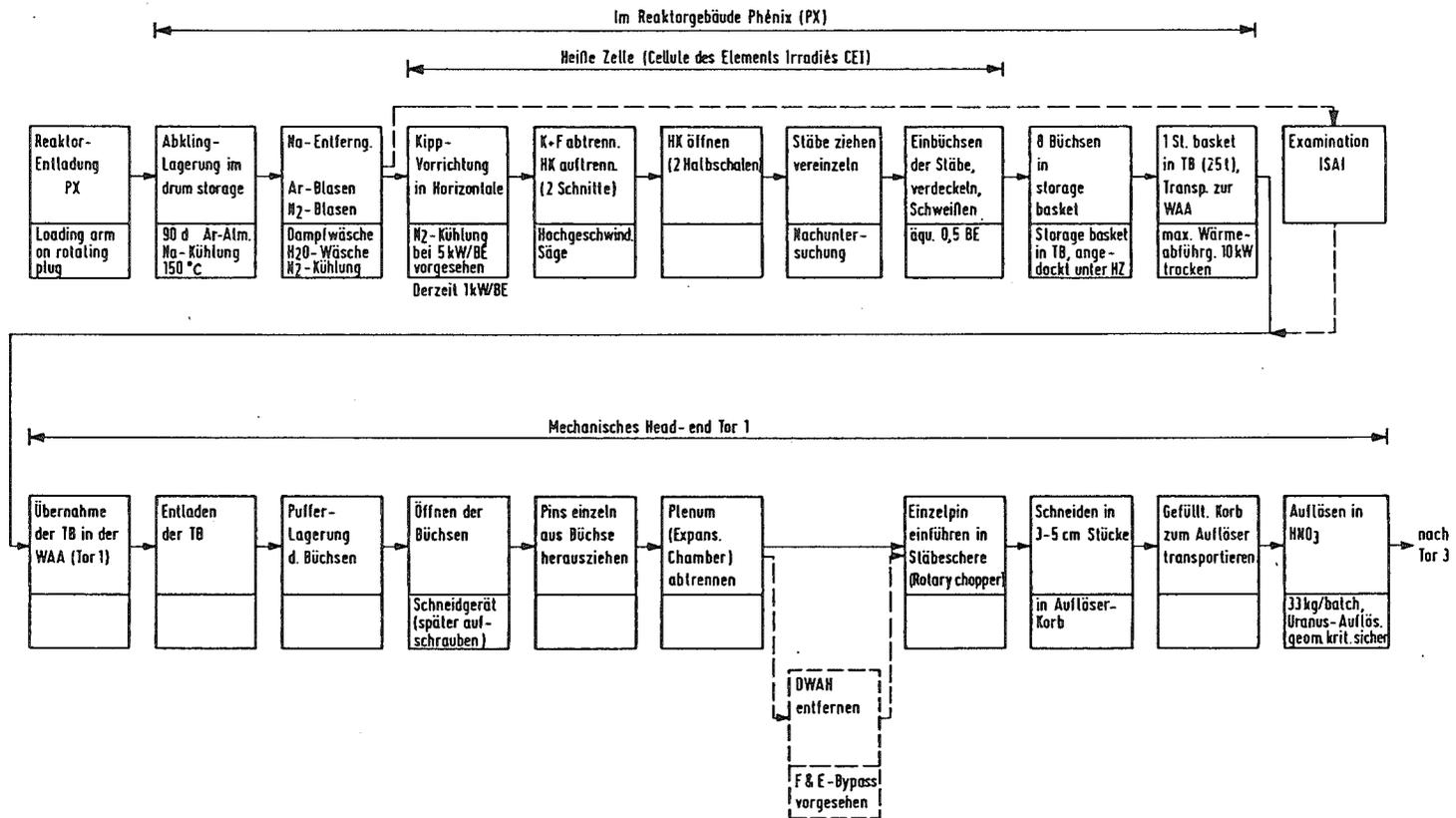


ABB. 5: BRENNLEMENTBEHANDLUNG IN MARCOULE (PHENIX UND TOR-1)

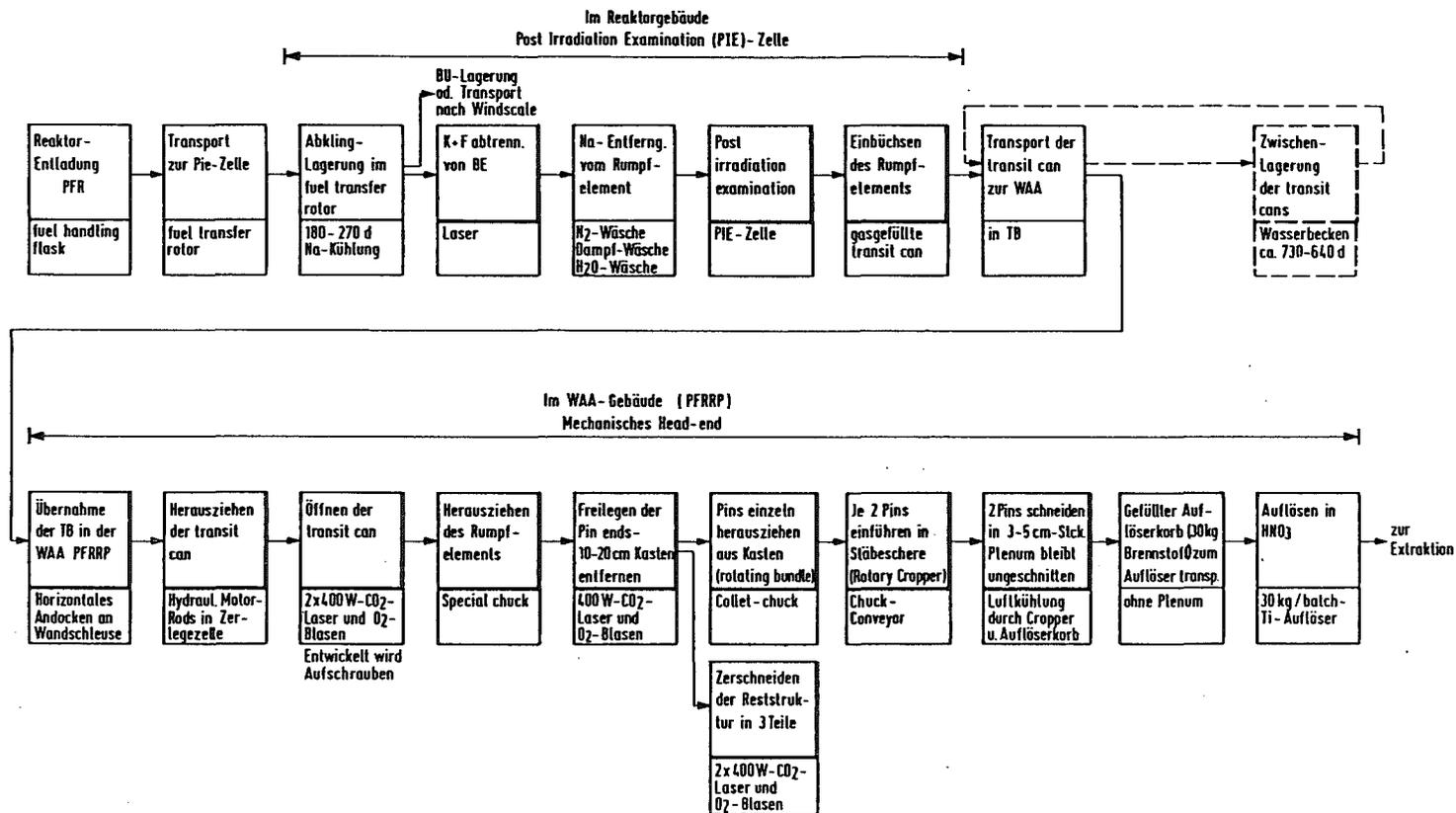


ABB. 6: Brennelementbehandlung in Dounray (PFR und PFRRP)

In Dounray (s. Abbildung 6) geht man nicht ganz so weit, es werden nur BE-Kopf- und Fußstücke im Reaktorgebäude entfernt; interessant ist der mehrfache Einsatz von Laser-Schneidgeräten.

Die Situation in Deutschland läßt sich durch folgende Entwicklungsstufen im Kernforschungszentrum Karlsruhe beschreiben:

- Praxis im Labormaßstab vorhanden
- Konzept für eine Pilotanlage (MILLI II) mit 5 jato Durchsatz vorhanden
- Studie für ein prototypisches Headend in Arbeit

In den Heißen Zellen des KfK wurden bisher 3 Test- und 1 Treiberelement der KNK II zerlegt (s. Abbildung 7).

Die Elemente waren nicht gewaschen, d.h. die aufgetretenen Zerlegekräfte waren hauptsächlich wegen der Natrium-Verklebungen notwendig. Interessant ist vor allem, daß trotz steigenden Abbrands und kürzerer Kühlzeit die Zerlegezeit ständig kürzer wurde, für das Treiberelement wurden nur noch 40 Stunden benötigt.

Für die Entsorgung ganzer Coreladungen der KNK II wird eine verbesserte Zerlegemaschine zur Verfügung stehen. Die in den Heißen Zellen vereinzelt Brennstäbe werden gebüchst, im MZFR-Wasserbecken zwischengelagert und schließlich in der Anlage TOR/SAP in Marcoule wiederaufgearbeitet.

In der MILLI II - Planung (s. Abbildung 8) wurden folgende Prinzipien berücksichtigt:

- Zellenmäßige Trennung von Mechanik und Chemie
- Die Zerlegezelle wird fernbedient gewartet
- Zur Abtrennung von Kopf- und Fußstück wird eine Bügelsäge verwendet
- Die Zerkleinerung geschieht mit einer Ein-Stab-Schere

Einzelheiten der Konzeptstudie "MILLI II" sind einem späteren Vortrag zu entnehmen.

BE	ABBRAND MAX. LOK. (MWD/T)	KÜHLZEIT (MONATE)	TEMPERATUR			ZERLEGEKRÄFTE		ZERLEGEZEIT
			KASTEN AUSSEN (°C)	BÜNDEL OFFEN (°C)	BÜNDEL MIT KASTEN	STÄBE ZIEHEN	STÄBE DRÜCKEN (KP)	
NY 208	17,000	17	95	144	600	9 - 12	1,5	MEHRERE WOCHEN
NY 202	60,000	12	135	230	750	3 - 12	1,5	110 H
NY 203	100,000	9	210	400(?)		1 - 25	0,5-13	50 H
TREIBER - ELEMENT								40 H

ABB. 7: ZERLEGUNG VON KNK-11-BE IN DEN HEISSEN ZELLEN DES KFK

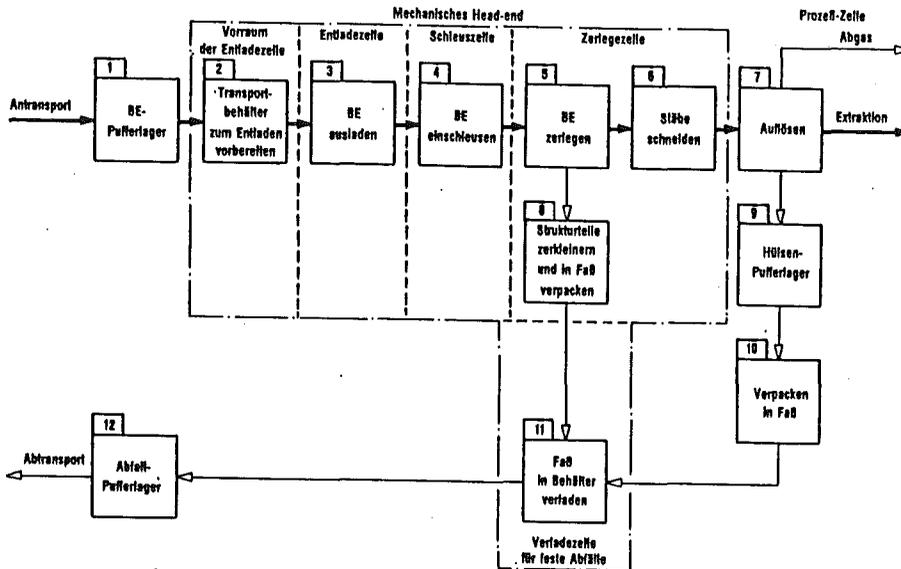


ABB. 8: MILLI-II BLOCKSCHEMA MECHANISCHES HEAD-END

5. Fehlendes Know-how

In einer Systemstudie "Mechanisches Headend für die Wiederaufarbeitung von Brüterbrennelementen" sollen evtl. vorhandene Know-how- oder Erprobungslücken sichtbar gemacht werden.

Im Rahmen dieser vom Projekt Schneller Brüter der KFK initiierten Studie wird das vorhandene Know-how erfaßt, analysiert, bewertet und für die Konzipierung eines prototypischen Headends (50 jato Durchsatz) herangezogen.

Dabei offenkundig werdende Fehlstellen werden deklariert und entsprechende Maßnahmen vorgeschlagen.

Da die Studie noch nicht abgeschlossen ist, soll am Beispiel der Brennelement-Zerkleinerung die Vorgehensweise demonstriert werden (s. Abbildung 9).

Für alle relevanten Arbeitsschritte, Anordnungen, Wartungskonzepte usw. werden die Bewertungskriterien ähnlich aufgelistet und systemanalytisch gesichtet.

Aus dem hier gewählten Beispiel ging die Stäbeschere mit der besten Wertung hervor.

In dem synthetisierten Prototyp-Headend sind bisher die in Abbildung 10 aufgelisteten wesentlichen Komponenten enthalten, die jeweilige Verfügbarkeit ist markiert.

Als vorläufiges Ergebnis steht fest, daß keine der wesentlichen Komponenten identisch für das mechanische Brüterbrennelement-Headend verfügbar ist, allerdings ist auch kein grundsätzlich neues Prinzip zu entwickeln.

ZERKLEINERUNGSGERÄT	VORTEILE	NACHTEILE
1. STABSCHERE (EINZELN, MEHRFACH)	EINFACH, ERFAHRUNGEN IN DEUTSCHLAND, GUTE SCHNITTQUALITÄT	BE-VORZERLEGUNG, DURCHSATZ 0,3 - 0,5 T U/H, VIEL HANTIERUNG
2. BÜNDELSCHERE (MIT ODER OHNE BÜGELSÄGE)	LWR-DURCHSATZ 1-1,5 T U/H, WENIG MANIPULATIONEN, HOHER AUTOMATI- SIERUNGSGRAD MÖGLICH	WENIG ERFAHRUNGEN IN DEUTSCHLAND STRUKTURMATERIAL IM AUFLÖSER SCHNITTQUALITÄT WÄRMEABFUHR HOHE ANFORDERUNG AN SCHNEIDWERK- ZEUG
3. LASER	KEIN VERSCHLEISS	AEROSOLENTWICKLUNG, FOKUSSIEREN, WENIG ERFAHRUNG IN DEUTSCHLAND
4. SÄGE		GERINGER DURCHSATZ, VERSCHLEISS, KEINE ERFAHRUNGEN
5. SCHREDDER	HOHER DURCHSATZ	VERSCHLEISS, STAUBENTWICKLUNG, BRANDGEFAHR, KEINE ERFAHRUNGEN

ABB. 9: GEGENÜBERSTELLUNG VERSCHIEDENER ZERKLEINERUNGSVERFAHREN

	IDENTISCH VERFÜGBAR, HEIß ERPROBT	ANDERE GRÖßEN VERFÜGBAR, HEIß ERPROBT	KALT ERPROBT	MODIFIKATION ERFORDERLICH	PRINZIP BEKANNT	PRINZIP NOCH NICHT BEKANNT
HÜBWAGEN FÜR TLB UND TB			X	X		
BE/BU-AKTIVITÄTS- MONITOR		X		X		
KIPPVORRICHTUNG FÜR BE/BU/BÜCHSE		X		X		
WANDSCHLEUSE FÜR BE/BU/BÜCHSE		X	X			
ZERLEGE BANK MIT BÜGELSÄGE FÜR BE/BU/BÜCHSE UND STRUKTURTEIL- ZERKLEINERUNG		X	X	X		
LASERSCHNEIDGERÄT FÜR HÜLLKASTEN			X	X		
STÄBESCHERE FÜR BRENN-U, BRUTSTÄBE		X		X		
VERTEILER FÜR STAB- ABSCHNITTE					X	
AUFLÖSER M. KORB		X		X		

ABB. 10: VERFÜGBARKEIT WESENTLICHER HEADEND-KOMPONENTEN

6. Zusammenfassung

Die Besonderheiten, speziell in der Brennelement-Geometrie, machen grundsätzliche Überlegungen zum Headend der Brüterbrennelement-Wiederaufarbeitung notwendig.

Nach dem derzeitigen Entwicklungsstand kann nur das Chop- and Teach-Verfahren zur Anwendung kommen.

Das international vorhandene Know-how zum mechanischen Headend ist vor allem in Frankreich und in Großbritannien im Pilot-Maßstab vorhanden, die deutschen Erfahrungen sind durchweg im Labormaßstab. Doch konnten besonders in den letzten Jahren mit der Zerlegung und teilweisen Wiederaufarbeitung mehrerer KNK II-Elemente im Kernforschungszentrum Karlsruhe große Fortschritte erzielt und der Brüterbrennstoffkreislauf im Kilogramm-Maßstab geschlossen werden.

Eine systemanalytische Betrachtung und die Konzipierung eines Prototyp-Headends machen deutlich, daß zwar kaum Verfahrenskomponenten aus dem LWR-Bereich identisch übernommen werden können, daß jedoch auch keine absoluten Neuentwicklungen notwendig sind. Der notwendige Entwicklungsaufwand wird sich in Grenzen halten, k.o.-Punkte sind nicht zu erwarten.